

Variations d'indice non linéaire en régime femtoseconde : effets directs et effets en cascade

Olivier Albert
Laboratoire d'Optique Appliquée
Centre de l'Yvette
CNRS ENSTA
Ecole Polytechnique
91761 PALAISEAU
tél : 01.69.31.97.85
fax : 01.60.10.60.85
e-mail : albert@enstay.ensta.fr

8 juillet 1998

N° attribué par la bibliothèque :

Thèse

pour obtenir le titre de

Docteur de l'Université Paris XI

Spécialité: Optique et Photonique

présentée et soutenue publiquement

par

Olivier ALBERT

le 11 juin 1998

Titre :

**Variations d'indice non linéaire en régime femtoseconde :
effets directs et effets en cascade**

Directeur de thèse : Dr. Jean Etchepare

Jury

M. Patrick Bouchareine	Président
M. Jean Etchepare	
M. Eric Freysz	Rapporteur
M. François Hache	
M. Hervé Maillotte	Rapporteur

Remerciements

Ayant passé quatre agréables années au Laboratoire d'Optique Appliquée, je tiens à en remercier son directeur André Antonetti, qui m'a d'abord accueilli comme scientifique du contingent puis comme étudiant en thèse.

J'ai eu beaucoup de plaisir à travailler sous la direction de Jean Etchepare. Toujours présent, il a guidé mes travaux et écouté patiemment mes digressions de calcul ou expérimentales. Je le remercie donc chaleureusement pour toutes ces années passées ensemble et pour sa patience envers moi.

Je remercie les deux rapporteurs, Eric Freyz et Hervé Maillotte, pour l'attention avec laquelle ils ont étudié mon manuscrit et pour les conseils qu'ils m'ont apportés. Je tiens aussi à remercier les autres membres du jury : son président Patrick Bouchareine et François Hache pour l'intérêt et la sympathie qu'ils ont porté à mon travail. Ce fut un plaisir et un honneur pour moi de les avoir pour jury.

Dans notre petit groupe, je tiens à remercier le professeur Jean Claude Loulergue, et Charles Antoine Gautier qui ont contribué à rendre ce travail agréable.

Un remerciement tout spécial à Kien Dany Penn qui m'a initié au travail expérimental avec un laser à colorant et pour son humour hautement non linéaire : $\chi^{(n)}$.

Je voudrais souligner le fait que sans la patience et la gentillesse de Régine Muller ce manuscrit serait plein de fautes d'orthographe. De plus, j'ai bénéficié de l'aide précieuse de Mathieu Mérian pour préparer ma soutenance. Je tiens à les remercier tous les deux pour ce support bien agréable pendant les derniers jours de ma thèse.

Ayant réalisé un travail principalement expérimental, j'ai bénéficié de l'aide de nombreuses personnes du laboratoire que je tiens à remercier. Je commencerai par Armindo Dos Santos qui m'a appris comment dompter la chaîne femtoseconde de la salle rose. Avec Hamoniaux, ils ont passé beaucoup de temps à me transmettre leur savoir ancestral sur les lasers.

Je remercie Gilles Rey et Georges Grillon pour leurs conseils lors de la réalisation de l'amplificateur paramétrique.

Je remercie particulièrement Charly pour l'astuce et la précision avec lesquelles il a conçu et réalisé les pièces mécaniques pour l'expérience.

Je remercie Pascal Rousseau et Pierre Zaparucha pour m'avoir enseigné l'usage des systèmes d'acquisition de données. J'espère qu'ils garderont un bon souvenir de moi, même quand je ne serai plus là et qu'ils auront à apporter quelques modifications au système que j'ai réalisé.

Je remercie aussi le centre de calcul de l'Yvette et en particulier Alain Paris qui a subi toutes mes demandes en logiciels et particulièrement sur \LaTeX .

Je voudrais remercier mes camarades thésards, et en particulier Adeline Bonvalet, Hélène Gélabert, Laurent Lepetit, Rüdiger Lange ... pour leur amical soutien.

Je remercie toutes celles et tous ceux qui, dans la laboratoire, m'ont aidé pendant ces trois années à un moment ou à un autre, car ce fut toujours avec beaucoup de disponibilité et de gentillesse. Je pense en particulier au secrétariat et à tant d'autres.

Enfin je remercie ma famille et mes amis pour leur soutien ainsi que mon amie Sulan Hsu pour sa compréhension.

Table des matières

Introduction	1
1 Mesure de phase	5
1.1 Introduction	5
1.2 Du Z-scan à notre détecteur	6
1.2.1 Principe	6
1.2.2 Le faisceau laser	8
1.2.2.1 Le faisceau gaussien	8
1.2.2.2 Autres formes de faisceaux	8
1.2.3 Traversée de l'échantillon	9
1.2.3.1 Approximation du masque de phase	9
1.2.3.2 Milieux épais	10
1.2.3.3 Anisotropie de la réfraction non linéaire	11
1.2.4 Diffraction en champ lointain	12
1.2.4.1 Condition de champ lointain	12
1.2.4.2 La décomposition en gaussiennes	13
1.2.4.3 Diffraction de Fresnel	13
1.2.5 Mesure du signal	14
1.2.5.1 Mesure par filtrage spatial	14
1.2.5.2 Mesure avec une caméra CCD	18
1.2.5.3 Calcul de la non-linéarité	20
1.3 Expérience de type pompe sonde	20
1.3.1 La résolution temporelle	21
1.3.2 Linéarité et dynamique du signal	22
1.3.3 Critère de la lentille de Kerr	22
1.3.4 Polynômes de Zernike	25
1.3.4.1 Calcul des polynômes	26
1.3.4.2 Propriétés des polynômes	27
1.3.5 Conditions géométriques	27
1.3.6 Mise en œuvre	29
1.3.7 Cas particulier de la mesure avec une caméra vidéo	30
1.4 Autres systèmes	30
1.4.1 Les réseaux induits	31

1.4.2	La porte Kerr	31
1.5	Conclusion	32
2	Non linéarités optiques et variations de phase	33
2.1	Les phonons optiques	33
2.1.1	Vecteur d'onde et dispersion	34
2.1.2	Groupes de symétrie et règles de sélection	35
2.1.3	Le $\chi^{(3)}$ et les modes Raman	36
2.1.4	Le polariton	39
2.2	Vecteurs d'onde et phonons	42
2.2.1	Phonons non symétriques	44
2.2.2	Phonons symétriques	47
2.2.3	Vecteur d'onde et expériences	50
2.3	Non linéarités en cascade	52
2.3.1	Calcul de $\chi^{(2)}$ en cascade	52
2.3.1.1	Accord de phase	54
2.3.2	Résumé	55
3	L'amplificateur paramétrique optique	57
3.1	Introduction	57
3.2	Non linéarités optiques du deuxième ordre	58
3.2.1	Polarisation non linéaire d'ordre 2	58
3.2.2	Cristaux pour l'amplification paramétrique	60
3.2.3	Equations de Sellmeier du β -BBO	60
3.2.4	Génération et amplification paramétrique	61
3.2.4.1	Accord de phase	62
3.2.4.2	Accordabilité	64
3.2.4.3	Coefficients effectifs	65
3.2.4.4	Double réfraction ou walk off	66
3.2.4.5	Longueur quasistatique paramétrique	67
3.2.4.6	Gain	70
3.2.4.7	Spectres	70
3.2.4.8	Accord de phase non colinéaire	70
3.2.5	Génération de 2 ^{de} harmonique	73
3.3	Laser femtoseconde	75
3.3.1	L'oscillateur	75
3.3.2	L'amplificateur	76
3.3.3	L'oscillateur et son amplificateur	77
3.4	L'amplificateur paramétrique	77
3.4.1	Génération de continuum	77
3.4.2	Faisceaux de pompe	79
3.4.3	Accord de phase dans β -BBO	79
3.4.4	Les deux étages d'amplification	80

3.4.5	Compression temporelle de l'impulsion	82
3.5	Caractérisation	82
3.5.1	Energie et stabilité	83
3.5.2	Spectres	84
3.5.3	Durée	84
3.5.4	Forme spatiale du faisceau	87
3.5.5	Accordabilité	88
3.6	Conclusion	88
4	Expériences	89
4.1	Introduction	89
4.2	Dispositif expérimental	89
4.2.1	Système d'acquisition	90
4.2.1.1	Electronique	91
4.2.1.2	Acquisition vidéo	93
4.2.1.3	Informatique	93
4.2.2	Normalisation du signal	95
4.3	Phonons optiques	96
4.3.1	Coefficients diagonaux	96
4.3.1.1	Validation de l'expérience	97
4.3.1.2	Le vecteur d'onde	102
4.3.2	Coefficients non diagonaux	104
4.3.3	Conclusion	106
4.4	Non-linéarités en cascade	107
4.4.1	Cascade de $\chi^{(2)}$ dans β -BBO	107
4.4.1.1	Doublage et recombinaison de fréquences	108
4.4.1.2	Somme et recombinaison de fréquences	110
4.4.1.3	Modulation de phase et chirp	111
4.4.1.4	Les valeurs et signes des non-linéarités	113
4.4.2	Autres cascades non linéaires	114
4.4.2.1	Mesures en fonction de la longueur d'onde	114
4.4.2.2	La rectification optique	115
4.4.2.3	Non linéarité d'ordre plus élevé	116
4.4.2.4	Expériences pour différentes épaisseurs	118
4.4.2.5	Expériences en fonction de l'énergie	119
4.4.3	Conclusions	121
	Conclusion	123
	Bibliographie	i
	Index	ix

Table des figures

1.1	Schéma de principe du Z-scan	6
1.2	Exemple de signal Z-scan	7
1.3	Z-scan avec différents filtrages spatiaux	16
1.4	Exemple de profils en champ lointain	17
1.5	Rendements des différents filtrages spatiaux	18
1.6	23
1.7	23
1.8	Position maximum du Z-scan fonction de l'intensité laser	24
1.9	Mesure de linéarité du détecteur	25
2.1	Dispersion des phonons dans la première zone de Brillouin	35
2.2	Dispersions polariton de deux premiers modes A_1 de KNbO_3	40
2.3	Géométrie des vecteurs d'ondes pour l'induction de phonon	44
2.4	Dispersion du vecteur d'onde d'un mode non symétrique fonction de la fréquence du phonon et de la géométrie d'induction	46
2.5	Dispersion du vecteur d'onde du mode B_2 de KNbO_3 en fonction de la longueur d'onde de pompe.	48
2.6	Dispersion des vecteurs d'onde des modes symétriques de KNbO_3	49
2.7	Distribution du vecteur d'onde du mode A_1 TO de KNbO_3	50
2.8	Accord de phase pour la somme de fréquences entre le 615nm et l'infrarouge dans $\beta\text{-BBO}$	55
3.1	Dispersion chromatique des indices dans $\beta\text{-BBO}$	61
3.2	Schéma énergétique de l'émission stimulée paramétrique	62
3.3	L'accord de phase pour l'APO pompé à 615nm	64
3.4	L'accord de phase pour l'APO à différentes longueurs d'onde de pompe	65
3.5	Trièdre direct	66
3.6	Angles entre vecteur d'onde, champ et vecteur de Poynting	68
3.7	Longueur quasistatique	69
3.8	Accords de phase non colinéaires.	71
3.9	Ecart de vitesse de groupe fonction de l'accord de phase	72
3.10	Accord de phase interne pour le doublage	74
3.11	Cavité laser à colorants femtoseconde CPM	75

3.12	Schéma de montage de l'APO	78
3.13	Accord de phase pour l'APO avec réfraction.	80
3.14	Accord de phase pour le doublage avec réfraction	81
3.15	Fonctionnement et stabilité de l'OPA	83
3.16	Spectre de l'impulsion à $620nm$	84
3.17	Spectre IR paramétrique modulé	84
3.18	Spectres IR paramétriques	85
3.19	Auto-corrélation à $620nm$	86
3.20	Corrélation croisée entre le $620nm$ et l'IR paramétrique	86
3.21	Corrélation croisée entre le $620nm$ et l'émission spontanée para- métrique	86
3.22	Image du faisceau en sortie de l'APO	87
4.1	Schéma de principe des expériences pompe sonde.	90
4.2	Synopsis du système d'acquisition.	92
4.3	Dispersion polariton de A_1 dans $KNbO_3$	97
4.4	Axes principaux de $KNbO_3$	98
4.5	Second mode A_1 de $KNbO_3$	99
4.6	Différence entre signal filtré et par transmission	100
4.7	Mesure du mode E_2 de $LiIO_3$ à $614nm$	101
4.8	Mesure du mode E_2 de $LiIO_3$ à $960nm$	101
4.9	Mesure du mode A_1 de $LiIO_3$	102
4.10	FFT du mode A_1 de $LiIO_3$	102
4.11	Dispersion du premier mode E de $PbTiO_3$	105
4.12	Dispersion angulaire de la variation de phase induite autour de l'accord de phase pour le doublage	108
4.13	Cascade de $\chi^{(2)}$ autour de l'accord de phase du doublage, phase de la sonde pour un décalage angulaire de $+0.5deg$	109
4.14	Cascade de $\chi^{(2)}$ autour de l'accord de phase du doublage, phase de la sonde pour un décalage angulaire de $-0.5deg$	109
4.15	Cascade de $\chi^{(2)}$ associée à la somme de fréquence, $\Delta k \sim 0$	111
4.16	Cascade de $\chi^{(2)}$ associée à la somme de fréquence, $\Delta k < 0$	111
4.17	Chirp lié à un $\chi^{(3)}$ instantané.	112
4.18	Phase et chirp liés au doublage hors accord de phase.	113
4.19	Phase et chirp liés à la somme de fréquence hors accord de phase.	113
4.20	Accord de phase pour le doublage de type I dans $KNbO_3$	115
4.21	Effets en cascade dans $KNbO_3$	118
4.22	Cascade $\chi^{(2)}$, $\chi^{(4)}$ dans β -BBO	119
4.23	Effet en cascade fonction de l'énergie IR dans $KNbO_3$	120

Liste des tableaux

1.1	Polynômes de Zernike	27
1.2	Dynamique signal fonction des critères géométriques	28
2.1	Fréquences du mélange à quatre ondes	43
2.2	vecteurs d'onde du CARS	47
2.3	Vecteur d'onde et expériences	51

Introduction

L'optique non linéaire doit une grande partie de son succès à l'étendue des longueurs d'onde qu'elle permet d'atteindre avec un laser. Elle permet la réalisation de sources laser accordables de l'infrarouge jusqu'à l'ultra violet, grâce à la combinaison de fréquences: ce sont les systèmes de doublage, de somme de fréquences et les amplificateurs paramétriques.

Il existe aussi des effets de phase non linéaires, qui sont étudiés par exemple pour des applications de télécommunication à haut débit, comme la commutation optique ou le multiplexage, ils servent aussi pour des applications de laboratoire comme la spectroscopie non linéaire.

Dans ce document sont présentées des expériences de mesures de déphasages liés à des non-linéarités directes ou en cascades. Il s'agit de mesures résolues en temps, à l'échelle de la dizaine de femtosecondes.

L'effet de phase non linéaire le plus connu dans le domaine femtoseconde est l'effet Kerr. Il correspond à une interaction à quatre ondes, donc à une non-linéarité optique du troisième ordre. Il est à la base du blocage de modes par auto focalisation Kerr dans un laser Saphir dopé Titane, fonctionnant en régime d'impulsions courtes.

L'effet Kerr est souvent instantané dans les liquides et les solides isotropes, lors d'expériences à l'échelle de temps de quelques femtosecondes, car il correspond à un mouvement électronique dans le matériau non linéaire.

Il existe des phénomènes non instantanés, liés à des mouvements de noyaux, ou d'ions, qui ont une durée de vie supérieure à la durée d'une impulsion femtoseconde. Ce sont par exemple les phonons optiques.

Les phonons optiques sont des modes de vibration de cristaux. Les modes de plus basse fréquence ont des périodes d'oscillation supérieures à la durée d'une impulsion femtoseconde et sont, par conséquent, excitables de manière impulsionnelle par celle-ci.

Nos mesures résolues en temps permettent de mesurer précisément la période, donc la fréquence, des phonons. Nous nous sommes aussi attachés à déterminer avec précision le vecteur d'onde du phonon, par le calcul et l'expérience.

En effet, nos expériences permettent de mesurer des phonons au centre de la première zone de Brillouin, pour des vecteurs d'onde inférieurs à quelques

centaines de cm^{-1} . Dans cette zone les phonons sont sujets à des dispersions de fréquence en fonction du vecteur d'onde, liées à un couplage photon phonon. Celles-ci sont appelées dispersions polariton. Il est alors important de déterminer avec précision le couple vecteur d'onde fréquence que nous pouvons mesurer.

Nous montrerons à ce sujet qu'il existe deux processus différents pour l'induction de phonons en régime femtoseconde qui donnent des valeurs différentes de vecteurs d'onde et de fréquences.

Au delà de la spectroscopie, nous avons aussi mesuré des variations de phase fonction du temps, liées à des non-linéarités en cascade.

Lors d'un processus de somme de fréquences il y a simultanément recombinaison de la fréquence somme avec les fréquences initiales. Ce processus est une cascade non linéaire car il est constitué d'une première non-linéarité du second ordre pour la somme, associée à une seconde non-linéarité du second ordre pour la recombinaison. Ce processus, assimilable à une non-linéarité d'ordre trois, provoque dans certaines conditions une variation de phase.

Nous avons étudié cette phase liée à la cascade car elle a des propriétés intéressantes : le déphasage induit est souvent supérieur à celui d'un effet Kerr classique et il est possible de choisir son signe. De plus, pour la réalisation de systèmes non linéaires femtosecondes il est important de contrôler la phase de l'impulsion : elle a une incidence importante sur le spectre de celle-ci, donc sur sa durée.

Pour faire ces expériences de mesure de déphasage résolues en temps, j'ai réalisé un système expérimental issu de la technique dite du Z-scan, communément employée depuis peu pour mesurer la réfraction non linéaire n_2 des matériaux les plus divers.

Il s'agit de mesurer la variation de divergence apportée au faisceau de sonde par le déphasage non linéaire induit par un faisceau de pompe dans l'échantillon. L'information extraite de cette expérience est proportionnelle au déphasage induit ; elle permet donc d'en déduire son signe.

Nous avons travaillé sur le positionnement de l'ensemble des éléments de l'expérience de manière à garantir que le résultat obtenu est linéaire par rapport au déphasage induit, sur une dynamique d'amplitude contrôlée. Nous avons expérimenté la technique de mesure de divergence par filtrage spatial en champ lointain. Nous avons caractérisé la sensibilité et la dynamique du système pour différentes formes de filtrages spatiaux, de manière à les adapter aux signaux que nous mesurons.

La résolution temporelle est obtenue en séparant l'impulsion de pompe de celle de sonde, contrairement au Z-scan qui utilise un seul faisceau. Les impulsions ayant des durées de 70fs , nous pouvons mesurer des variations temporelles de la phase de l'ordre de quelques dizaines de femtosecondes à quelques picosecondes.

Beaucoup d'expériences ont été faites avec des faisceaux pompe et sonde à

des longueurs d'onde différentes. Pour ce faire, j'ai construit un amplificateur paramétrique femtoseconde à deux étages accordable en longueur d'onde dans le proche infrarouge.

Il s'agit d'un amplificateur de type I utilisant des cristaux de β -borate de baryum. Il amplifie des longueurs d'onde dans l'infrarouge proche, entre $780nm$ et $960nm$, par sélection de fréquence dans un continuum généré à partir du laser de source par focalisation dans une lame de saphir.

Pour présenter le travail réalisé pendant ma thèse, j'ai agencé ce document en quatre chapitres.

Les deux premiers chapitres sont à dominante théorique :

- le premier chapitre présente le système de mesure de phase, et en particulier le travail de simulation et de contrôle de l'expérience qui assure la linéarité du signal sur une bonne dynamique.
- Le second chapitre est constitué, quant à lui, d'une présentation des phonons optiques et de la dispersion polariton, suivi des calculs faits sur la détermination du vecteur d'onde. Il traite enfin, de la théorie des non-linéarités en cascade et des simulations numériques associées.

Les deux chapitres suivants sont à dominante expérimentale :

- le troisième chapitre présente d'abord l'amplificateur paramétrique que j'ai construit et les expériences faites pour caractériser complètement son fonctionnement.
- le quatrième et dernier chapitre montre les expériences réalisées grâce au détecteur de phase. Il décrit les résultats concernant les phonons optiques. Ensuite viennent les expériences de mesure de la phase liée aux cascades de non-linéarités.

Chapitre 1

Mesure de phase

1.1 Introduction

Les expériences de mélange à quatre ondes permettent de mesurer les non linéarités du troisième ordre dans les matériaux. Ce sont généralement des expériences interférométriques, par exemple de type Mach Zehnder, mesurant une différence de marche entre une onde de référence et celle perturbée par la non-linéarité. Ces expériences mesurent un déphasage induit sur un faisceau dit de sonde. Les non-linéarités de type Kerr, correspondant à des non-linéarités du troisième ordre, induisent des déphasages proportionnels à l'intensité des champs inducteurs.

Il existe toute une série d'instruments optiques permettant de mettre en évidence des déformations sur une surface de phase. Ils sont basés sur la relation univoque qui lie la phase d'une onde dans un plan orthogonal à la direction de propagation et son amplitude dans un plan de Fourier associé. Cette relation sert de base à la caractérisation des aberrations géométriques des optiques les plus variées¹.

En 1990 est apparue une nouvelle méthode, baptisée Z-scan, de mesure de déphasages induits par des non-linéarités optiques de type Kerr. Cet indice optique non linéaire, noté n_2 , est issue de l'ordre trois des non linéarités optiques ; il correspond donc à un phénomène de mélange à 4 ondes. Ce mélange, dans le cas du Z-scan est réalisé avec un seul faisceau laser. Cette technique a l'avantage de donner un signal linéaire permettant de mesurer l'amplitude et le signe de la non-linéarité[2]. Elle est de plus en plus utilisée pour mesurer des coefficients non linéaires de toutes sortes.

1. De nombreux systèmes de visualisation d'aberrations, basés sur ce principe, ont été développés depuis longtemps : la lame de Foucault, le test de Ronchi, celui de Hartman, les interféromètres de Newton, Fizeau et Haidinger sont des exemples célèbres[1]

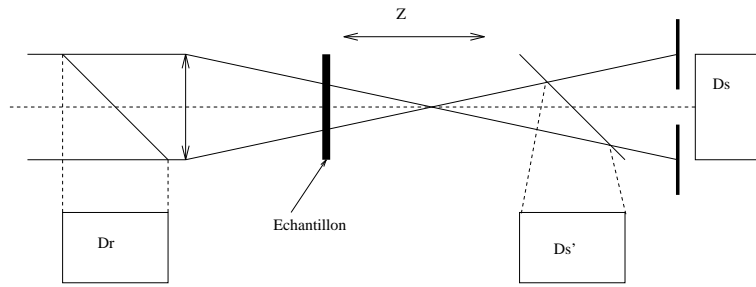


FIG. 1.1 – : Schéma de principe du Z-scan : l'échantillon est déplacé le long de l'axe optique autour du col du faisceau laser. Les photodiodes D servent à mesurer la référence (D_r), le signal filtré (D_s) et l'absorption (D_s')

Nous avons utilisé le principe de mesure du Z-scan pour concevoir une expérience de mélange à quatre ondes à deux faisceaux résolue en temps.

Nous présenterons dans un premier temps le principe du Z-scan et ses développements, en mettant en avant les éléments qui ont motivé la conception de notre propre système de mesure présenté dans un second temps. Celui-ci, inspiré du même principe, est adapté à la mesure linéaire de dynamiques temporelles de non-linéarités dans des cristaux.

Cette technique de mesure, résolue en temps, permet de séparer les différentes contributions à la non-linéarité que nous voulons mesurer et est bien adaptée à la mesure dynamique de phonons optiques.

1.2 Du Z-scan à notre détecteur

Le Z-scan a connu une évolution très rapide ces dernières années [2-9]. Cette section donne le principe fondamental du Z-scan puis ses différentes évolutions, en particulier celles qui présentent un intérêt pour notre propre système de mesure.

1.2.1 Principe

Le Z-scan est fondé sur l'autofocalisation Kerr dans les matériaux. Nous verrons, page 9, que l'échantillon se comporte comme une lentille de phase sous l'effet de l'intensité laser. Le laser est focalisé en un point z_0 . L'échantillon est déplacé le long de l'axe $(0,z)$ de propagation du laser autour de la position z_0 (figure 1.1). Ce déplacement de l'échantillon provoque un changement de la divergence du laser. Pour un observateur placé en champ lointain et dans le cas d'un indice non linéaire positif, le faisceau apparaît plus divergent lorsque l'échantillon est avant z_0 et plus convergent lorsqu'il est placé après. Si la lentille n'est plus convexe mais concave le faisceau a un comportement inverse lors du déplacement de l'échantillon suivant l'axe $(0,z)$. Pour mesurer la variation de divergence lors du Z-scan,

un trou de filtrage spatial est placé entre le faisceau et une photodiode, en champ lointain. Nous montrerons plus tard que les variations de flux transmises par le trou sont proportionnelles au déphasage induit dans l'échantillon. Ce dernier point, et la simplicité du montage, expliquent l'intérêt porté par de nombreuses équipes de recherche à ce système.

La figure 1.2 donne un signal Z-scan classique ; il présente deux extrema correspondant à une convergence maximum et à une divergence maximum.

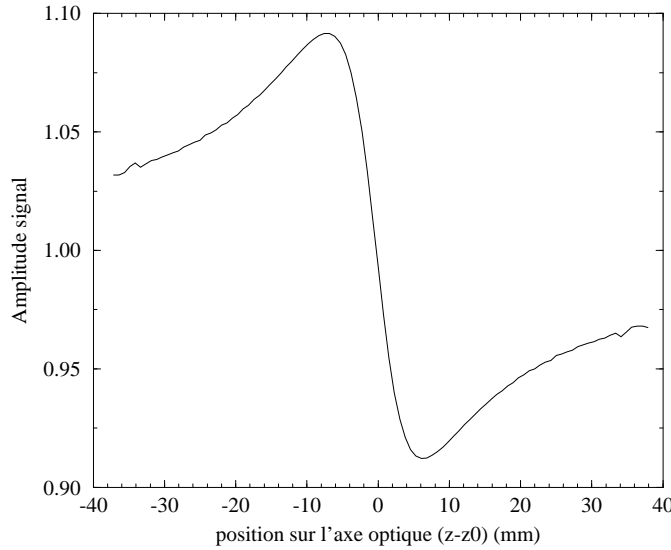


FIG. 1.2 –: Exemple de signal Z-scan ; calcul à partir d'un coefficient proche de la valeur de celui du CS_2 : $n_2 = -3.1 \times 10^{-14} \text{cm}^2/\text{Watt}$, dans une cuve de 1mm d'épaisseur, à un faisceau gaussien de $1 \text{GW}/\text{cm}^2$ de densité de puissance.

En mesurant l'amplitude entre les extrema de la mesure il est possible de déduire la valeur de la non-linéarité et son signe.

Cette technique de mesure permet aussi de séparer la réfraction de l'absorption. Pour cela il faut mesurer simultanément le flux filtré et le flux total, le premier contenant l'information sur la réfraction et le second sur l'absorption. En s'appuyant sur les nombreuses caractéristiques du Z-scan présentées dans les sections suivantes nous définissons notre propre système de mesure. Celui-ci apporte, en plus des principes fondamentaux du Z-scan, la résolution temporelle et des éclaircissements sur l'exceptionnelle linéarité de la mesure.

1.2.2 Le faisceau laser

D'un point de vue général, la propagation de la lumière est calculée en utilisant l'équation de propagation de Helmholtz.

Un faisceau laser, du fait de sa directivité, nous permet de considérer que l'amplitude du champ est négligeable loin de l'axe de propagation : c'est l'approximation paraxiale. Dans l'approximation paraxiale, et en supposant que l'enveloppe du champ est lentement variable² les solutions de l'équation de Helmholtz ont une répartition d'amplitude Gaussienne [10]. Ces ondes permettent l'usage d'un formalisme mathématique simple pour calculer leur propagation.

Pour les propagations d'impulsions sans perturbation non linéaire nous utiliserons le formalisme des faisceaux gaussiens paraxiaux. Nous reviendrons aux équations de Helmholtz pour les propagations dans les milieux non linéaires et à l'optique diffractive pour la propagation libre d'impulsions avec une phase perturbée.

1.2.2.1 Le faisceau gaussien

Nous utiliserons l'expression 1.1 du champ Ψ gaussien se propageant dans la direction z :

$$\Psi(r, z) = \underbrace{\Psi_0 \cdot \frac{W_0}{W} \cdot \exp\left(-\frac{r^2}{W^2}\right)}_{\text{amplitude}} \cdot \underbrace{\exp\left(\frac{ikr^2}{2R}\right)}_{\text{champ paraxial}} \cdot \underbrace{\exp(-ikz + i\Phi)}_{\text{phase}} \quad (1.1)$$

avec

$$\begin{aligned} r^2 &= x^2 + y^2 \\ \Phi &= \arctan\left(\frac{\lambda z}{\pi W_0^2}\right) \\ R &= z \left(1 + \left(\frac{\pi W_0^2}{\lambda z}\right)^2\right) \\ W &= W_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi W_0^2}\right)^2} \end{aligned} \quad (1.2)$$

La largeur du col du faisceau gaussien est W_0 .

1.2.2.2 Autres formes de faisceaux

Le formalisme des faisceaux gaussiens a été choisi car il décrit bien la propagation d'un faisceau laser classique. Certains auteurs ont expérimenté des formes différentes de faisceau :

² Pour une propagation dans la direction "z" le champ Ψ varie de façon linéaire en z soit $\frac{\delta^2 \Psi}{\delta z^2}$ est négligeable.

Le *top hat* est une forme obtenue par filtrage circulaire au niveau de la lentille de focalisation sur l'échantillon. La forme du faisceau au point focal est la figure d'Airy pour une ouverture circulaire soit une forme en $\frac{J_1(r)}{r}$ [11]. L'utilisation du *top hat* a permis d'obtenir une sensibilité environ 2.5 fois supérieure à l'usage d'un faisceau gaussien[8].

Un faisceau ayant une forme de figure d'Airy limitée à son premier maximum a été expérimenté pour s'affranchir de la forme souvent douteuse des faisceaux *top hat*[12]. Pour l'obtenir il faut la combinaison d'un filtrage spatial circulaire suivi d'un second dans le plan de Fourier associé pour supprimer les anneaux produits par les maxima secondaires. Dans le plan de l'échantillon ce faisceau a une intensité presque constante sur son profil radial et ne présente plus les fluctuations à fortes fréquences spatiales du *top hat*. La dynamique du signal obtenu est équivalente à celle d'un faisceau *top hat*.

Les calculs sont fait avec un faisceau gaussien même si, lors de l'expérience, le faisceau est plutôt une figure d'Airy limitée à son premier maximum.

Des expériences de Z-scan avec un faisceau elliptique ont montré que la symétrie radiale du faisceau est importante [12, 13]. Nous avons donc cherché à avoir des faisceaux les plus circulaires possible lors des expériences, malgré l'ellipticité naturelle du faisceau liée à l'amplification du laser dans des cuves de Bêthune (voir la section 3.3.2).

1.2.3 Traversée de l'échantillon

L'expérience utilise un faisceau non collimaté ; l'échantillon est placé au voisinage du col du faisceau.

Suivant l'épaisseur de l'échantillon nous pouvons considérer que le profil d'amplitude du faisceau reste inchangé ou non. Le premier cas nous place dans l'approximation du masque de phase alors que le second correspond à une propagation dans un milieu non linéaire épais.

1.2.3.1 Approximation du masque de phase

L'autofocalisation Kerr est basée sur la variation d'indice Kerr liée à l'intensité du faisceau.

$$n = n_0 + \frac{n_2}{2}|\Psi|^2 = n_0 + \gamma I \quad (1.3)$$

avec I l'intensité laser, et $n_2 = \frac{cn_0}{40\pi}\gamma$, $n_2(esu)$ et $\gamma(m^2/W)$ l'indice de réfraction non linéaire.

Un échantillon est considéré comme mince quand le champ qui le traverse n'a pas de modification notable de son profil radial au cours de sa traversée. C'est l'approximation de l'enveloppe lentement variable.

En se plaçant dans cette approximation, l'intensité du champ Ψ : $I = |\Psi|^2$ et sa phase ϕ évoluent suivant les équations:

$$\frac{\delta\phi}{\delta z} = \Delta n(I)k \quad (1.4)$$

$$\frac{\delta I}{\delta z} = -(\alpha + \beta I)I \quad (1.5)$$

avec α le terme d'absorption linéaire et β l'absorption à deux photons.

Le déphasage introduit suit le profil d'intensité du laser, soit:

$$\delta\phi(z, r, t) = \delta\phi_0(z, t)e^{-\frac{2r^2}{W^2(z)}} \quad (1.6)$$

avec $\delta\phi_0(z, t) = \frac{\delta\phi_0(t)}{1+z^2/z_0^2}$, $\delta\phi_0(t) = k\delta n_0(t)L_{eff}$. et $L_{eff} = \frac{1-e^{-\alpha L}}{\alpha}$ la longueur effective³ de l'échantillon tenant compte de l'absorption linéaire α et de la longueur réelle L de celui-ci. Cela correspond à un masque de phase appliqué au champ laser. En première approximation ce masque est considéré comme une lentille de phase soit: $e^{-\frac{2r^2}{W^2(z)}} \sim 1 - \frac{2r^2}{W^2(z)}$ d'où l'appellation de lentille de Kerr.

Le masque de phase se caractérise par un terme de phase de la forme $e^{i\delta\phi(r)}$. Il correspond à un déphasage fonction de la coordonnée radiale r dans un plan normal à la propagation du champ.

Le champ Ψ_e en sortie de l'échantillon s'écrit alors à partir des équations 1.6 et 1.1:

$$\Psi_e(z, r, t) = \Psi(r, z).e^{-i\omega t}.e^{i\delta\phi(z, r, t)} \quad (1.7)$$

Le Z-scan consiste en un déplacement de l'échantillon donc de la lentille de phase sur l'axe z de propagation de part et d'autre du col du faisceau.

1.2.3.2 Milieux épais

La traversée d'un milieu épais nous conduit à considérer l'équation de propagation :

$$\nabla^2 \Psi - \frac{1}{c^2} \frac{\delta^2}{\delta t^2} [(n + \Delta n)^2 \Psi] = 0 \quad (1.8)$$

Le terme $\nabla^2 \Psi$ n'est plus négligeable, l'onde ne conserve plus sa forme spatiale lors de la traversée de l'échantillon.

3. Ce n'est pas parce que l'échantillon est considéré comme mince d'un point de vue de la propagation d'un champ qu'il l'est d'un autre point de vue. L'effet Kerr étant un effet de volume, entre dans son calcul l'épaisseur de matière traversée.

Pour intégrer dans l'espace l'équation 1.8 plusieurs hypothèses permettent de simplifier le calcul[3] :

La variation de phase induite est remplacée par son développement limité au premier ordre:

$$\Delta n(r) = \Delta n(0) \exp(-2 \frac{r^2}{W^2}) \sim \Delta n(0) (1 - 2 \frac{r^2}{a W^2}) \quad (1.9)$$

où a est un terme de correction[14].

Le calcul est décomposé en tranches comprenant le masque de phase lié à $\Delta n(r)$ et une propagation du champ sur une distance élémentaire Δl . L'empilement de ces tranches simule la propagation dans l'échantillon [15, 16].

Une seconde manière de calculer la propagation dans l'échantillon utilise le formalisme gaussien[17]. Il s'agit de recalculer la position et la taille du col du faisceau au fur et à mesure de la propagation. Cette solution très approximative ne permet pas de simuler la formation d'anneaux liée à un fort déphasage.

Ces calculs sont très utiles pour ceux qui étudient la limitation optique[7] ou tout autre effet spatial, spectral ou temporel induit lors de la propagation non linéaire.

A la vue de la diversité des situations qui peuvent se présenter dans ces conditions de milieu épais, nous avons choisi de travailler uniquement dans l'approximation des milieux minces.

Le calcul du comportement du champ dans un milieu épais nous permet uniquement de montrer que notre système ne fournira plus un signal linéaire sur une grande dynamique et nous permet d'évaluer l'épaisseur maximum acceptable de l'échantillon pour travailler dans de bonnes conditions. Dans nos conditions expérimentales, avec des densités d'énergie ne dépassant pas 1 GW/cm^2 , des épaisseurs d'échantillon inférieures ou égales à 1 mm sont dans l'approximation du masque de phase.

1.2.3.3 Anisotropie de la réfraction non linéaire

La variation d'indice non linéaire Δn de l'équation 1.9 est considérée comme une grandeur scalaire lors des calculs sur le Z-scan. Pourtant, dans les cristaux, cet indice non linéaire correspond à un tenseur (associé au $\chi^{(3)}$).

Les mesures faites avec une polarisation laser parallèle aux axes optiques cristallins permettent de considérer le système comme *apparaissant isotrope* pour le champ laser. La mesure de divergence se faisant avec un filtre spatial circulaire placé en champ lointain, l'ensemble des calculs suppose que le système est de symétrie circulaire.

La technique Z-scan a alors été utilisée pour mesurer l'anisotropie de la réfraction non linéaire dans les cristaux [18]. Cela a permis de mesurer les n_2 de différents cristaux suivant leur axe optique.

L'indice non linéaire d'un cristal étant anisotrope, lorsque ces matériaux sont sondés hors de leurs axes propres, la variation de phase est aussi anisotrope. Cela se traduit par l'apparition d'un astigmatisme dans le profil d'intensité du faisceau en champ lointain.

Le profil de la variation d'indice induite perd sa symétrie circulaire et prend la forme :

$$\Delta n(x, y) \sim \begin{bmatrix} \Delta n_{xx} & \Delta n_{xy} \\ \Delta n_{yx} & \Delta n_{yy} \end{bmatrix}_{(0,0)} \left(1 - \frac{2}{a} \frac{\begin{bmatrix} x \\ y \end{bmatrix}^2}{W^2} \right) \quad (1.10)$$

L'anisotropie non linéaire du système détruit la symétrie circulaire et le filtrage spatial n'est plus adapté à la mesure du signal. Pour mesurer une variation de phase induisant de l'astigmatisme il faut avoir recours à des systèmes d'imagerie du faisceau entier comme des capteurs CCD [19].

Lors des calculs il est donc important de tenir compte des polarisations des champs concernés et de leur orientation par rapport au cristal [20]. Nous chercherons à rester dans l'approximation isotrope lors de nos mesures.

1.2.4 Diffraction en champ lointain

A une répartition d'amplitude et de phase en champ proche (sur l'échantillon) est associée une répartition d'amplitude et de phase en champ lointain. Mesurer la variation de répartition d'amplitude en champ lointain permet de connaître la variation de phase en champ proche lorsque l'on connaît l'amplitude.

Pour propager le faisceau signal du champ proche au champ lointain il existe plusieurs méthodes que nous aborderons après avoir défini ce qu'est pour nous le champ lointain.

1.2.4.1 Condition de champ lointain

Dans l'approximation des champs gaussiens, la définition du champ lointain par rapport au champ proche est fonction de la longueur de Rayleigh.

$$z_r = \frac{W_0}{\theta} = \frac{\lambda}{\pi \theta^2} = \frac{\pi W_0^2}{\lambda} \quad (1.11)$$

avec W_0 la taille du faisceau au col et θ la divergence du faisceau. Il faut que la distance séparant les deux plans puisse être considérée comme infiniment grande

par rapport à z_r . Le champ test ayant une longueur de Rayleigh de quelques millimètres nous avons choisi une distance de quelques dizaines de centimètres pour séparer nos plans. Pour des raisons pratiques, le champ lointain que nous considérons dans nos expériences est éloigné de $50cm$ à $1m$ de l'échantillon. Nous bénéficions alors d'un rapport entre la distance inter plan et la longueur de Rayleigh supérieur à 100 ce qui est une bonne approximation. Pour le vérifier par le calcul nous avons utilisé l'équation 1.16 qui propage le faisceau sur une distance d . Les résultats obtenus pour des valeurs de d comprises dans l'intervalle $[0.5m, +\infty[$ sont tous identiques à un facteur d'échelle près, ce qui confirme notre approximation.

1.2.4.2 La décomposition en gaussiennes

Il est possible de décomposer le déphasage induit en une somme de gaussiennes[21] :

$$e^{i\Delta\Phi} = \sum_{m=0}^{\infty} \left[\frac{i\Delta\Phi_0(z,t)}{m!} \right] . e^{-2m \frac{r^2}{W_{P0}^2}} \quad (1.12)$$

Cette décomposition permet de propager le faisceau en propageant individuellement chacun des faisceaux gaussiens le composant. Cela présente l'avantage de rester dans l'approximation gaussienne familière des opticiens du laser. L'inconvénient majeur de cette décomposition est qu'elle décrit très mal la formation d'anneaux de diffraction pour les fortes variations de phase.

1.2.4.3 Diffraction de Fresnel

La diffraction de Fresnel propose une forme intégrale à la propagation libre entre deux surfaces[11] :

$$\Psi_{Td}(\rho, \theta, d) = \frac{-i}{\lambda d} e^{ikd} \iint_S \Psi_{TS}(r, \theta, z) . e^{\frac{2i\pi(r^2 + \rho^2 - 2r\rho)}{2\lambda d}} . dS \quad (1.13)$$

avec d la distance entre le plan de sortie de l'échantillon et le plan de mesure, et $dS = r.dr.d\theta$ [22].

Pour faire le calcul numérique de la diffraction d'un faisceau il est intéressant de se placer dans l'approximation de la diffraction de Fraunhofer, de manière à transformer une intégrale de surface en transformée de Fourier pour laquelle il existe des codes de programmation efficaces [23]. Pour cela il faut extraire de l'équation 1.13 un terme en $e^{2i\pi r\rho}$ typique de la transformée de Fourier.

En faisant le changement de variable :

$$\rho' = \frac{\rho}{2\lambda d} \quad (1.14)$$

l'équation 1.13 devient:

$$\Psi_{Td}(\rho', \theta, d) = \frac{-ie^{i(kd+4id\pi\lambda\rho'^2)}}{\lambda d} \int_{\theta=0}^{2\pi} \int_{r=0}^{\infty} \Psi_{TS}(r, \theta, z). e^{\frac{2i\pi r^2}{2\lambda d}}. e^{2i\pi r \rho'}. r. dr. d\theta \quad (1.15)$$

En supposant que le faisceau est symétrique de révolution, Ψ_{TS} est indépendant de θ et l'équation 1.15 devient:

$$\Psi_{Td}(\rho', d) = \frac{-ie^{i(kd+4id\pi\lambda\rho'^2)}}{\lambda d} \int_{r=-\infty}^{\infty} \Psi_{TS}(r, z). e^{\frac{2i\pi r^2}{2\lambda d}}. r. e^{2i\pi r \rho'}. dr \quad (1.16)$$

Nous disposons alors d'une équation facilement calculable numériquement car l'intégrale est une transformée de Fourier.

Dans l'approximation cylindrique il est possible d'utiliser la transformée de Hankel[24]:

$$\tilde{f}(\rho) = \int_{r=0}^{\infty} f(r). J_0(2\pi r \rho). dr \quad (1.17)$$

avec J_0 la fonction de Bessel d'ordre 0.

Ces outils numériques permettent, connaissant l'amplitude en champ proche et lointain du faisceau non perturbé, de calculer à partir de l'amplitude en champ lointain du faisceau perturbé sa phase en champ proche.

1.2.5 Mesure du signal

Pour observer une modification du profil d'amplitude en champ lointain il y a plusieurs solutions. La première qui vient à l'esprit est de faire une image complète du faisceau avec une caméra CCD. Cette option sera discutée plus tard car elle pose le problème de la quantité de données à gérer lors de la mesure. Une solution ne demandant pas une grande capacité de mesure est le filtrage spatial suivi d'une simple photodiode.

1.2.5.1 Mesure par filtrage spatial

L'intensité totale n'étant pas modifiée, pour un effet purement photorefractif, il faut mesurer la variation d'intensité sur une région du profil en utilisant un masque d'amplitude devant une photodiode. La configuration la plus communément employée consiste à placer un trou au centre du faisceau[2]. La lentille de phase ayant pour effet de focaliser ou de défocaliser le faisceau, l'intensité à travers le trou va augmenter ou diminuer.

Nous remarquons tout de suite que nous obtenons un signal contenant le signe de la variation de phase, ce qui est un des principaux avantages de cette méthode de mesure.

Le signal enregistré correspond au rapport du flux traversant le filtre de rayon r_f avec le flux total du laser :

$$\Delta T = \frac{\int_{r=0}^{r_f} |\Psi_{Td}(r)|^2 \cdot r \cdot dr}{S \cdot \int_{r=0}^{\infty} |\Psi_{Td}(r)|^2 \cdot r \cdot dr} \quad (1.18)$$

Le facteur S correspond à la transmission linéaire du filtre : $S = 1 - \exp(-\frac{2r_f^2}{W^2})$ avec W le rayon du faisceau sur le filtre dans l'approximation gaussienne. Ce facteur S est indispensable pour normaliser le signal par rapport au rayon du filtre. Plus le rayon du filtre sera grand par rapport à celui du faisceau plus le signal sera faible. A contrario, un rayon infiniment petit devant le rayon du faisceau donne un signal maximum.

Comme nous l'avons expérimenté[25, 26] et comme le montre la figure 1.3, un filtrage spatial hors de l'axe augmente la sensibilité de mesure jusqu'à un facteur 10. Différentes formes de filtres ont été utilisées. Certains mesurent l'intensité du faisceau avec un disque masquant son centre[6, 9], d'autres une partie du faisceau avec un trou excentré[9].

Pour le filtrage hors de l'axe nous utilisons un anneau. Nous avons constaté, avec une simulation numérique, que l'usage d'un anneau donne un résultat linéaire sur une plus grande dynamique que le filtrage utilisant un disque opaque centré. Pour réaliser nos anneaux nous avons photographié des dessins d'anneaux sur une pellicule photo haute densité⁴ et utilisé les négatifs ainsi obtenus comme filtres spatiaux.

Pour illustrer le fonctionnement du filtrage spatial en fonction de sa forme considérons la figure 1.4. Elle présente un exemple numérique de profil d'intensité gaussien en champ lointain (a). Prenant pour exemple un $n_2 > 0$ induit dans l'échantillon, placé avant le col du faisceau laser le profil d'amplitude obtenu dans le plan du filtre spatial est plus large (b). La différence de ces deux profils donne le signal enregistré avec un trou fonction de sa position radiale r'_f par rapport au centre du faisceau.

A la vue de cette courbe, il apparaît qu'un trou centré transmet une variation de flux plus importante qu'un trou excentré pour un même déphasage. En

4. La pellicule haute densité transmet 90% sur sa zone non impressionnée et coupe tout le flux ailleurs. Ces mesures ont été faites avec un flux laser de l'ordre de grandeur de celui du faisceau de pompe en champ lointain.

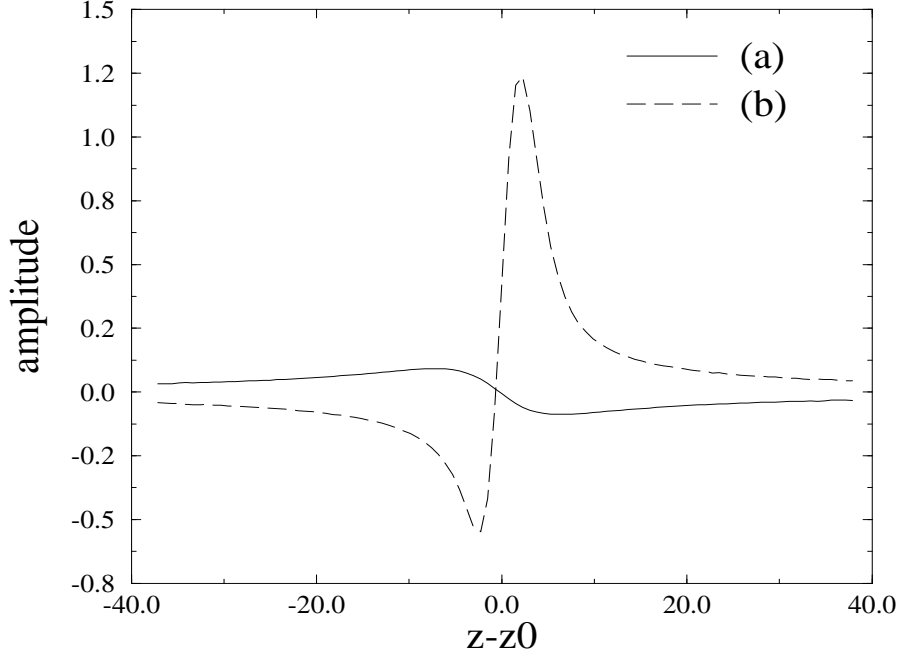


FIG. 1.3 –: *Simulation de deux mesures Z-scan avec un filtrage spatial par un trou central (a) et un anneau (b) de diamètre égal à deux fois celui du faisceau et d'épaisseur permettant d'avoir le même flux que pour le trou en absence de signal, pour une même non-linéarité correspondant à un échantillon de 1mm d'épaisseur avec un n_2 choisi à $-3 \times 10^{-14} \text{cm}^2/\text{Watt}$, ce qui est une valeur réaliste, proche de celle de nos échantillons. Les abscisses correspondent à des millimètres.*

intégrant sur un cercle de rayon r'_f le signal obtenu par un trou excentré, nous obtenons le signal transmis par un anneau de rayon r'_f et d'épaisseur $2r_f$ (correspondant au diamètre du trou). Ce résultat est montré par la courbe (b) de la figure 1.5. L'épaisseur de l'anneau est très faible pour ce calcul; il est égal à $W/100$, ce qui est au désavantage du flux transmis par le trou car il fait tendre la courbe vers une valeur très proche de zéro pour le trou.

Lors de nos expériences, les trous utilisés ont un diamètre de 0.5mm pour un diamètre à mi hauteur du faisceau de 5 ou 6mm ce qui ramène le rapport r_f/W à 10%. La courbe (b) de la figure 1.5 est quasiment inchangée mais le rapport entre la transmission de l'anneau et celle du trou pour une même non-linéarité passe d'une valeur presque infinie à des valeurs comprises entre 7 et 20. Nous avons typiquement lors de nos mesures, des variations de flux 10 fois supérieures avec un anneau qu'avec un trou.

Il apparaît évident qu'il faut utiliser un anneau de rayon supérieur à celui du

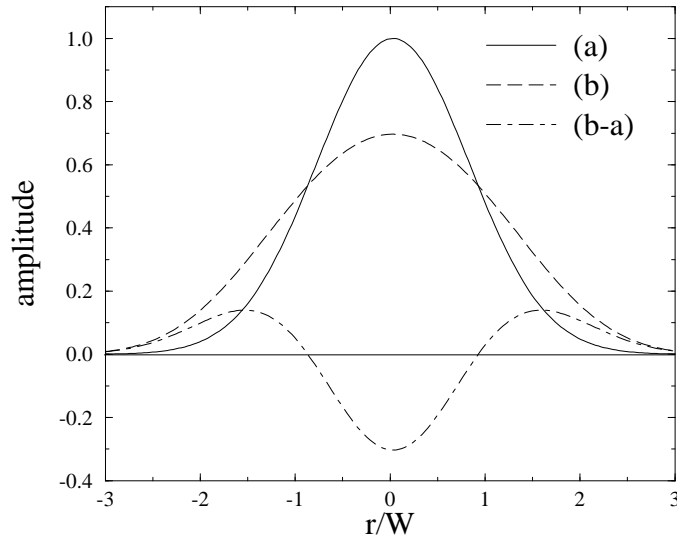


FIG. 1.4 –: Exemple de profils en champ lointain : (a) profil du faisceau initial, (b) profil défocalisé (b-a) différence entre les profils a et b.

faisceau. Le rayon de l'anneau correspondant à la plus grande variation de flux doit être compris dans un intervalle de 1.5 à 2 fois le rayon du faisceau.

La courbe (c) de la figure 1.5 montre le rapport entre le signal et le flux transmis par le filtre en absence de signal. Elle montre l'importance croissante de la variation de flux (le signal) par rapport au flux en absence de signal, quand le rayon r'_f de l'anneau augmente. Les variations de flux sont proportionnelles au déphasage induit dans l'échantillon ; elles sont donc positives ou négatives. Le fait que la partie constante du flux soit faible pour un anneau, limite la dynamique de mesure pour des variations de flux négatives ; en effet, lorsque le flux signal est trop faible, nous approchons du niveau de bruit du détecteur et le signal perd sa linéarité.

Nous choisirons donc toujours de positionner l'échantillon sur l'axe Z de manière à ce que la variation de flux la plus importante soit positive pour conserver la dynamique la plus grande possible.

Il existe des systèmes de compensation du bruit de fluctuation pour des filtres spatiaux hors d'axe. M. Sheik Bahae utilise deux montages symétriques, le premier sert à la mesure et le second sert de référence[6]. Nous avons plutôt choisi de sélectionner nos tirs lasers, avec l'énergie comme critère, et de faire la moyenne sur plusieurs tirs pour une mesure.

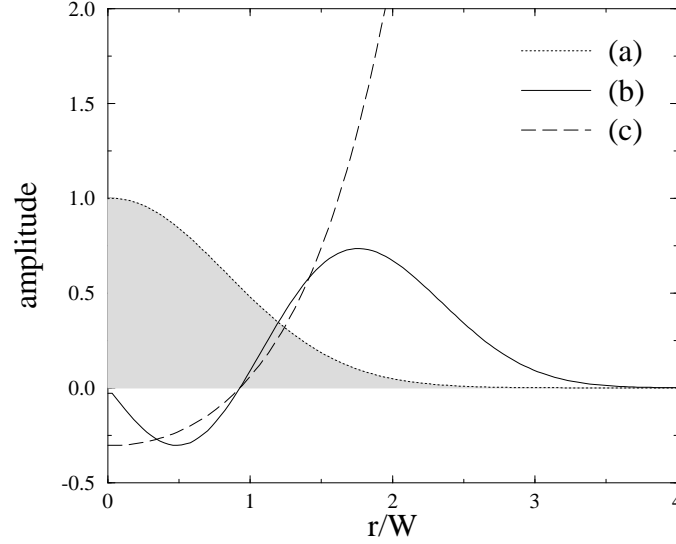


FIG. 1.5 –: *Rendements des différents filtrages spatiaux : (a) rappel du profil d’amplitude initial du faisceau en champ lointain, (b). Variation de flux transmise par un anneau d’épaisseur constante en fonction du rapport entre son rayon et celui du faisceau, calculé à partir de l’exemple de la figure 1.4, (c) Rapport entre les courbes b et a (ne tient pas compte du seuil de détectivité du système).*

1.2.5.2 Mesure avec une caméra CCD

L’information sur la phase en champ proche étant contenue dans la répartition spatiale en champ lointain il semble naturel de vouloir traiter l’ensemble du profil d’intensité du faisceau. Pour cela nous utilisons une caméra CCD synchronisée avec le laser.

Cette méthode est utilisée pour des mesures de Z-scan conventionnelles et permet de récupérer un signal ayant une dynamique trois fois plus importante que par filtrage spatial [19, 27]. Le traitement du signal consiste en une soustraction de l’image du faisceau initial à l’image du faisceau contenant le signal. L’augmentation de la sensibilité se déduit de la courbe (b) de la figure 1.5 ; le filtrage spatial a un rendement correspondant à une portion de cette courbe alors que le traitement de l’image complète correspond à l’intégrale de l’ensemble de la valeur absolue de la courbe [28].

Le traitement du signal que nous envisageons est différent ; il s’agit de reconstruire à partir des images de profils d’amplitude une image de la variation

du front d'onde dans l'échantillon. Les calculs de diffraction, présentés en section 1.2.4, montrent que si nous connaissons les profils d'amplitude, en absence de signal, en champs proche et lointain du faisceau test et en supposant une phase initiale plane en champ proche, nous pouvons calculer le profil de phase induit dans l'échantillon en fonction du profil d'amplitude signal mesuré en champ lointain.

Mesurer l'ensemble du profil de phase non linéaire induit dans un échantillon, permet d'augmenter le nombre d'informations que l'on peut extraire de l'expérience.

Il est possible avec une surface d'onde de séparer les contributions symétriques et non symétriques. En séparant les termes d'aberrations sphériques de la contribution de l'astigmatisme nous séparons du même coup des non-linéarités ayant des tenseurs de coefficients non linéaires différents. Ce système est, à priori, intéressant pour l'étude des phonons optiques (voir le chapitre 2.1).

Le traitement numérique du signal est important car il faut comparer le profil de référence avec le profil déformé puis calculer la variation de phase associée en tenant compte des profils initiaux.

Notre système informatique met plusieurs secondes pour traiter une image vidéo conventionnelle ce qui ne nous a pas permis de faire des expériences en fonction du temps. En effet pour une mesure de phonon en fonction du temps il faut au moins cinquante points pris à des délais différents, chaque point étant la moyenne d'au moins dix tirs lasers dans la bonne fourchette d'énergie. Le système dont nous disposons ne permet pas de traiter le signal en un temps suffisamment court pour s'affranchir des fluctuations lentes du laser. Un traitement a posteriori n'est pas envisageable car il est impossible de stocker environ cinq cents images vidéo sur un disque dur classique.

Cette option n'est pourtant pas abandonnée car les systèmes informatiques conventionnels sont de plus en plus rapides et ont des capacités de stockage de plus en plus importantes. Mais, le progrès décisif qui est en cours de réalisation est l'optimisation du logiciel d'acquisition et de traitement vidéo. En effet, la demande pour ce genre de système est relativement récente et la réponse des industriels peine à arriver à maturité. Les systèmes commerciaux d'acquisition et de traitement d'images fonctionnant correctement actuellement sont des systèmes basés sur des capteurs CCD reliés directement à une carte d'acquisition et de traitement spécifique. Ces systèmes n'utilisant pas le standard vidéo *grand public* sont beaucoup plus chers ; nous avons donc attendu un progrès que l'on nous avait promis rapide.

J'ai cependant réalisé le traitement numérique en aval pour calculer la surface de déphasage induite et adapter à notre système d'acquisition une caméra vidéo

synchrone et sa carte de numérisation du signal (voir le chapitre 4.2.1 sur le système d'acquisition). Le logiciel de traitement des images vidéo, lui, demande à être modifié pour être plus rapide.

1.2.5.3 Calcul de la non-linéarité

C'est maintenant qu'apparaît tout l'intérêt du Z-scan : il permet une mesure linéaire de la variation de phase induite, et une détermination simple de la valeur de la non-linéarité.

Plaçons-nous dans l'approximation du faisceau gaussien traversant un échantillon infiniment fin. Le filtre spatial est un trou centré de diamètre infiniment petit devant la taille du faisceau ; il est placé en champ lointain. Le calcul montre alors que l'écart entre les maxima de la mesure fonction de z est proportionnel au déphasage induit au centre du matériau indépendamment de la longueur d'onde du laser et de la géométrie du faisceau[2]. Soit :

$$\Delta T_{min-max} \simeq 0.406(1 - S)^{0.25} |\Delta\phi_0| \quad (1.19)$$

cette relation étant valide à $\pm 2\%$ pour $|\Delta\phi_0| \leq \pi$. Avec une bonne sensibilité de la mesure de flux, le $\Delta T_{min-max}$ minimum que l'on peut mesurer correspond à un $|\Delta\phi_0|$ de l'ordre de $\lambda/300$ ce qui donne au Z-scan une dynamique de mesure de déphasage comprise dans l'intervalle $]\lambda/300, \lambda/2[$, ce qui est remarquable. Le déphasage au centre étant lié à une variation d'indice du milieu, il est alors possible de le calculer. En tenant compte de l'épaisseur utile du matériau L et de k le vecteur d'onde du laser nous obtenons :

$$\Delta\phi_0 = k\Delta n_{(r=0)}L \quad (1.20)$$

$\Delta n_{(r=0)}$ étant la variation d'indice au centre du faisceau laser. Cette variation d'indice est liée à la non-linéarité induite dans l'échantillon.

Cette technique a permis de mesurer les n_2 effectifs de nombreux échantillons qu'ils soient solides, liquides ou gazeux pour lesquels $\Delta n = n_2 |\Psi_{laser}|^2$ [29-31].

1.3 Expérience de type pompe sonde

Nous cherchons à mesurer des variations de phase en fonction du temps. Pour cela il est intéressant d'adapter les principes du Z-scan à une expérience de type pompe sonde. Du Z-scan nous conserverons le principe de la focalisation Kerr et la relation linéaire entre la variation de phase induite dans l'échantillon et le signal.

Une expérience pompe - sonde permet de séparer l'induction d'un phénomène de sa mesure en temps et en longueur d'onde. Le Z-scan observe des phénomènes d'auto-modulation de phase ; nous mesurons, avec l'expérience pompe - sonde, de la modulation de phase croisée.

Le signal que nous considérons n'est plus la différence entre les maxima du signal Z-scan mais la différence entre le flux mesuré et le flux en absence de signal.

Pour conserver l'exceptionnelle linéarité du signal Z-scan il faut que notre expérience reste dans une bonne approximation de la lentille de phase. Pour cela nous avons considéré les différentes conditions expérimentales ajustables et établi un critère d'évaluation unique de la linéarité de l'expérience.

1.3.1 La résolution temporelle

Le Z-scan intègre la réponse de l'échantillon sur la durée de l'impulsion laser. Pour sonder l'échantillon en fonction du temps, il faut ajouter un second faisceau : la sonde. En superposant deux faisceaux ayant la même géométrie sur l'échantillon il est possible de faire une mesure Z-scan pour différents retards entre les faisceaux pompe et sonde[5, 32-34]. L'ensemble de ces mesures Z-scan donne la dynamique temporelle du phénomène.

Pour superposer deux faisceaux en vue de faire du Z-scan il est plus pratique d'utiliser deux longueurs d'onde différentes. En prenant la longueur d'onde fondamentale du laser et la première harmonique, la superposition se fait par l'intermédiaire de lames dichroïques et de lentilles achromatiques[4]. Il est aussi possible de superposer deux faisceaux de même longueur d'onde mais de polarisations orthogonales.

Lors de nos expériences nous voulons la résolution temporelle avec une seule longueur d'onde tout en choisissant librement nos polarisations laser. Il est alors impossible d'obtenir une superposition suffisante des faisceaux pour une mesure Z-scan. Nous avons donc choisi une configuration différente.

Pour adapter l'expérience à nos besoins nous sommes passés du Z-scan au Z_{max} T-scan. Il s'agit de placer l'échantillon en un point z_{max} fixe. Ce point z_{max} correspondant à une position de l'échantillon par rapport à z_0 pour laquelle la variation spatiale en champ lointain est maximale. En utilisant un faisceau de pompe pour induire la lentille de phase et un second faisceau de sonde pour lire ce déphasage, il est alors possible en choisissant le retard entre les deux faisceaux de mesurer la variation temporelle de la lentille induite. La position et la taille relative des faisceaux pompe et sonde utilisées pour nos expériences sont développées en section 1.3.6.

1.3.2 Linéarité et dynamique du signal

Obtenir un signal proportionnel aux non-linéarités que nous voulons mesurer est fondamental. La forme temporelle des signaux est composée, le plus souvent, d'une somme de sinusoïdes, d'exponentielles ou de formes plus compliquées. Si le signal mesuré n'est pas linéaire il est alors impossible de le comparer à un modèle théorique sans le corriger en mesurant l'amplitude du signal en fonction de la non-linéarité. Cette solution annulant tout l'intérêt de la méthode n'est pas à considérer.

Si le signal issu d'un Z-scan permet de calculer la valeur de la non-linéarité, notre méthode ne le permet plus. En effet, par rapport au calcul de la section 1.2.5.3, les paramètres de l'expérience sont plus nombreux et il devient aléatoire de calculer un coefficient de proportionnalité entre le signal et la variation de phase. Par contre, et du fait de la linéarité sur une grande dynamique du système, il est possible de faire des mesures comparatives entre des non-linéarités d'origines différentes.

Notre système de mesure doit conserver un signal linéaire sur la plus grande dynamique possible. En considérant le calcul au premier ordre de la section 1.2.5.3, le système semble linéaire sur une grande dynamique. Du fait du changement de géométrie imposé par l'usage de deux faisceaux la linéarité de la mesure n'est plus implicite mais doit être évaluée en fonction des conditions géométriques de l'expérience. Pour cette évaluation nous avons défini le critère de lentille de Kerr.

1.3.3 Critère de la lentille de Kerr

Les différents paramètres géométriques de l'expérience conditionnent la forme du profil de phase induit dans l'échantillon. Pour évaluer l'écart entre ce profil et une lentille de phase équivalente il faut trouver un critère général permettant de comparer l'effet des différents paramètres sur le système et définir une zone de fonctionnement pour le détecteur de phase.

Nous avons choisi de projeter la surface de variation de phase induite dans l'échantillon sur l'espace des aberrations géométriques optiques et en particulier sur l'ensemble des polynômes de Zernike présentés en section 1.3.4.

Pour un système centré, seuls les termes d'aberrations sphériques apparaissent ; les autres termes correspondent à des défauts d'alignement ; ce sont en particulier la coma ou l'astigmatisme.

Pour comprendre pourquoi il est intéressant de décomposer le front d'onde sur l'ensemble des termes d'aberrations sphériques, il faut considérer deux cas expérimentaux différents illustrés par les figures 1.6 et 1.7. La première figure montre un faisceau de sonde ayant un profil radial dont la largeur à demi hauteur

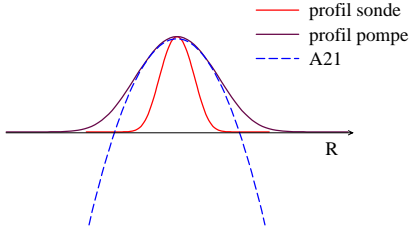


FIG. 1.6 –:

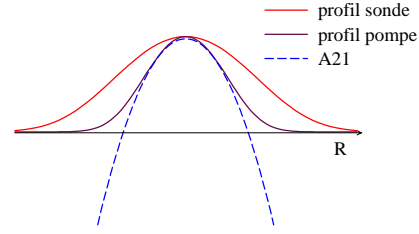


FIG. 1.7 –:

est inférieur à celle du profil du faisceau pompe. Il apparaît alors que la variation de phase induite par la pompe et vue par la sonde correspond à une zone pour laquelle elle est assimilable à A_{21} ; le premier terme d'aberration sphérique. Il est alors possible d'assimiler cette phase à une lentille de phase parfaite. Dans ce cas la variation de flux, mesurée avec le filtrage spatial est proportionnelle au déphasage induit.

La figure 1.7, quant à elle, présente le cas d'un faisceau de sonde dont le profil radial est plus grand que celui de la pompe. Dans cette condition, la sonde subit toujours l'influence du premier terme d'aberration sphérique, mais aussi les termes plus élevés, décrivant les pieds de la variation de phase induite par la pompe. Dans cette condition expérimentale, nous ne sommes plus dans l'approximation de la lentille de phase parfaite; la variation de flux mesurée n'est plus forcément proportionnelle au déphasage induit.

Pour évaluer l'écart à la lentille de phase parfaite, j'ai établi un critère, baptisé *critère de lentille de Kerr*, basé sur l'ensemble des aberrations sphériques.

Le critère de lentille de Kerr est donné par le rapport entre les ordres supérieurs (A_{42} , A_{84}) et le premier ordre d'aberration sphérique (A_{21}):

$$\text{Critère de lentille de Kerr} = \frac{A_{42} + A_{84} + \dots}{A_{21}} \leq 5\% \quad (1.21)$$

La décomposition en polynômes est faite à partir d'une surface d'onde circulaire de rayon unité. Le rayon choisi pour unité dans le plan de l'échantillon correspond à la largeur à demi hauteur du faisceau sonde, soit $r = W$.

Ce critère est établi à partir de la simulation numérique de l'expérience.

Comme nous l'avons posé en section 1.3.1, l'échantillon est positionné sur l'axe de propagation du faisceau sonde en un point z_{max} correspondant au maximum de variation de phase lors d'une expérience Z-scan. Le point z_{max} se déplace légèrement en fonction de l'amplitude de la variation de phase. La figure 1.8 montre cette variation sur une grande dynamique pour qu'elle soit visible.

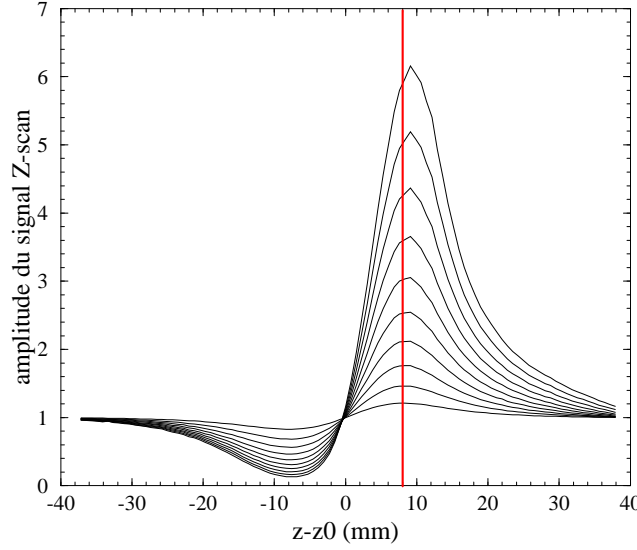


FIG. 1.8 –: Variation de la position maximum du Z-scan : z_{max} fonction de l'intensité laser. Le Z-scan est calculé pour des intensités variant d'un facteur 1 à 10. Pour cette simulation, les conditions géométriques sont : les diamètres des faisceaux pompe et sonde égaux sur l'échantillon à $50\mu\text{m}$ et un filtrage annulaire de rayon égal à 1.5 fois le rayon du faisceau sonde.

Cette variation, visible lors des calculs, est prise en compte dans la détermination de la dynamique de mesure du système.

Dans le plan de l'échantillon, les autres paramètres sont les diamètres des faisceaux pompe et sonde et l'intensité au centre du laser de pompe. Le calcul en déduit le front d'onde du faisceau sonde, lui soustrait le front d'onde initial, puis en déduit la valeur du critère de lentille de Kerr en projetant cette variation de front d'onde sur l'ensemble des polynômes de Zernike. La valeur du critère est indépendante de l'intensité du laser de pompe.

On calcule ensuite la propagation de la sonde jusqu'au filtre spatial, puis la réponse de celui-ci. En faisant varier l'intensité de la pompe on trace une courbe équivalente à celle, expérimentale, de la figure 1.9, permettant d'évaluer la linéarité de la réponse. Pour évaluer la dynamique sur laquelle le signal est linéaire on cherche sur cette courbe l'intensité pour laquelle la courbe s'écarte de plus de 1% de l'approximation linéaire.

Pour une géométrie donnée la valeur du critère de lentille de Kerr donne la dynamique sur laquelle le signal est linéaire.

Prenons comme exemple une variation de phase au centre valant π . Cela correspond à une variation de transmission de 50% au centre du faisceau, ce qui est de l'ordre de grandeur d'un n_2 électronique dans nos conditions expérimentales. Si nous voulons que le signal soit linéaire à $\pm 1\%$ sur cette dynamique de déphasage de $[0, \pi]$, il faut que le critère de lentille de Kerr soit inférieur à 5%. Nous avons vérifié que ces conditions sont suffisantes lors de nos expériences ; la figure 1.9 l'illustre en prenant pour exemple la réponse électronique de KNbO_3 et un filtrage spatial annulaire.

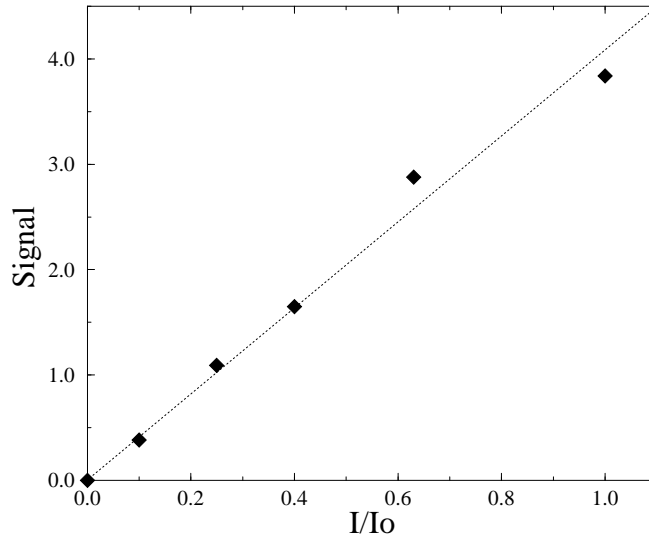


FIG. 1.9 – : *Mesure de la linéarité du détecteur sur une grande dynamique à partir de la réponse électronique de KNbO_3 , en respectant le critère de lentille de Kerr et en utilisant un filtrage spatial annulaire*

Une présentation des différentes conditions expérimentales possibles et de leur effet sur le critère est donnée en section 1.3.5, après une présentation des polynômes de Zernike.

1.3.4 Polynômes de Zernike

F. Zernike a proposé en 1934 un développement en polynômes d'une surface d'onde comprise dans un cercle de rayon unité pour laquelle chaque terme est orthogonal aux autres[35].

Ces polynômes ont des propriétés intéressantes permettant une projection facilement calculable et une interprétation du résultat obtenu immédiate.

1.3.4.1 Calcul des polynômes

Pour utiliser ces polynômes dans le cadre de nos expériences, il faut passer de la formulation complexe énoncée par Zernike[35] $Z_n^l = R_n^l(\rho)e^{il\theta}$ à une formulation réelle[11, 1] :

$$U_n^l = \begin{cases} \frac{1}{2}[Z_n^l + Z_n^{-l}] = R_n^l(\rho) \cos l\theta & \text{pour } l \leq 0 \\ \frac{1}{2i}[Z_n^l - Z_n^{-l}] = R_n^l(\rho) \sin l\theta & \text{pour } l \geq 0 \end{cases} \quad (1.22)$$

La condition d'orthogonalité qui fait toute l'originalité de ces polynômes s'écrit:

$$\int_{\rho=0}^1 \int_{\theta=0}^{2\pi} U_n^l U_{n'}^{l'} d\rho d\theta = \frac{\pi}{2(n+1)} \delta_{nn'} \delta_{ll'} \quad (1.23)$$

La condition d'orthogonalité et de normalisation telle que $R_n^{\pm m}(1) = 1$ pour la composante radiale R_n^l est :

$$\int_{\rho=0}^1 R_n^l(\rho) R_{n'}^l(\rho) \rho d\rho = \frac{1}{2(n+1)} \delta_{nn'} \quad (1.24)$$

avec pour $m = |l|$:

$$R_n^{\pm m}(\rho) = \sum_{s=0}^{\frac{n-m}{2}} (-1)^s \frac{(n-s)!}{s! \left(\frac{n+m}{2} - s\right)! \left(\frac{n-m}{2} - s\right)!} \rho^{n-2s} \quad (1.25)$$

La table 1.1 regroupe les premiers termes du développement des aberrations géométriques en polynômes de Zernike.

Un front d'onde $\phi(\rho, \theta)$ se décompose sur l'ensemble des polynômes de Zernike de degré $n \leq N$ tels que:

$$\phi(\rho, \theta) = \sum_{n=0}^N \sum_{m=0}^n A_{nm} U_{nm} = \sum_{n=0}^N \sum_{m=0}^n A_{nm} R_n^{n-2m} \begin{Bmatrix} \sin \\ \cos \end{Bmatrix} (n-2m)\theta \quad (1.26)$$

Pour projeter les fronts d'onde étudiés sur cet espace, j'utilise un programme en FORTRAN, générant ces polynômes puis calculant les différents coefficients A_{nm} par une technique des moindres carrés, proposée par David Dubinovsky de la société LightWave à Austin (Texas)⁵.

5. Ce programme a été mis au point en collaboration avec D. Dubinovsky lors d'une conversation publique sur le groupe de discussion Internet : *sci.optics*, fin 1996.

n	m	Polynômes de Zernike	Type d'aberration
0	0	1	Piston
1	0	$\rho \sin \theta$	Inclinaison autour de l'axe y
1	1	$\rho \cos \theta$	Inclinaison autour de l'axe z
2	0	$\rho^2 \sin 2\theta$	Astigmatisme avec l'axe à ± 45 deg
2	1	$2\rho^2 - 1$	Aberration sphérique
2	2	$\rho^2 \cos 2\theta$	Astigmatisme avec l'axe à 0 deg ou 90 deg
3	0	$\rho^3 \sin 3\theta$	Astigmatisme triangulaire de base x
3	1	$(3\rho^3 - 2\rho) \sin \theta$	Coma d'ordre 3 suivant x
3	2	$(3\rho^3 - 2\rho) \cos \theta$	Coma d'ordre 3 suivant y
3	3	$\rho^3 \cos 3\theta$	Astigmatisme triangulaire de base y
4	0	$\rho^4 \sin 4\theta$	Aberration sphérique du troisième ordre
4	1	$(4\rho^4 - 3\rho^2) \sin 2\theta$	
4	2	$6\rho^4 - 6\rho^2 + 1$	
4	3	$(4\rho^4 - 3\rho^2) \cos 2\theta$	
4	4	$\rho^4 \cos 4\theta$	

TAB. 1.1 –: *Polynômes de Zernike*

1.3.4.2 Propriétés des polynômes

Les propriétés les plus intéressantes des polynômes de Zernike découlent de leur condition d'orthogonalité et de leur normalisation.

La condition d'orthogonalité entre les termes des polynômes de Zernike permet de calculer la valeur de chaque coefficient A_{nm} indépendamment des autres. Il est possible d'ajouter ou de supprimer des termes sans modifier les valeurs des coefficients des autres. Cette propriété est strictement vraie pour des calculs sur un nombre infini de points répartis uniformément dans la pupille unitaire. Dans la pratique un calcul sur quelques centaines de points conserve cette propriété pour des fronts d'ondes n'ayant pas de fréquences spatiales trop grandes.

La condition d'orthogonalité permet d'associer la variance du front d'onde à la somme des variances de chaque coefficient, quand le front d'onde est une combinaison linéaire de polynômes de Zernike. Cette propriété permet lors du calcul numérique d'attribuer l'écart entre le front d'onde réel et le front calculé à des aberrations d'ordre supérieur qui ont été négligées.

La racine carrée de la variance d'un front d'onde est aussi appelée l'erreur quadratique moyenne (RMS) de la surface d'onde. Cette quantité sert fréquemment à juger de la qualité d'un front d'onde.

1.3.5 Conditions géométriques

L'expérience Z-scan utilise un seul faisceau, ce qui revient à dire que les caractéristiques géométriques des faisceaux pompe et sonde sont strictement iden-

tiques. L'usage d'un même faisceau pour la pompe et la sonde est le garant de la linéarité du système car la lentille gaussienne est une approximation convenable d'une lentille sphérique lorsque sa largeur à mi-hauteur est égale à celle du faisceau. Nos expériences dissociant les faisceaux pompe et sonde, de nombreuses configurations géométriques sont possibles.

Le faisceau sonde est issu du laser à $615nm$; une fois filtré, il est à peu près gaussien. Sa taille au col et sa divergence sont fixes. Le faisceau pompe quant à lui est, soit directement prélevé à partir du laser, soit provient de l'amplificateur paramétrique. Il est possible de conditionner le faisceau pompe à $615nm$ pour l'adapter à notre expérience. Le faisceau issu de l'amplificateur paramétrique est quant à lui plus difficile à manipuler. Il est loin d'être gaussien, et son énergie est trop faible pour autoriser un filtrage spatial.

Un critère géométrique important est le rapport des rayons des faisceaux sur l'échantillon ; nous avons vu que ce rapport est égal à 1 pour le Z-scan. Il s'agit de savoir si pour un rayon plus petit ou plus grand, la dynamique du signal linéaire est affectée ou améliorée de manière sensible.

Quelle que soit la géométrie de nos faisceaux nous voulons toujours faire nos mesures dans la zone linéaire du détecteur, donc pour un critère de lentille de Kerr $\leq 5\%$. Pour illustrer le comportement général du filtre par rapport aux tailles des faisceaux nous avons reporté dans la table 1.2 quelques valeurs de dynamiques. Ces valeurs ont été calculées pour un faisceau sonde ayant un col de $50\mu m$ de diamètre, correspondant à celui de nos expériences.

Géométrie	Variation considérée	Dynamique		Sensibilité relative
		Trou	Anneau	
$W_S \leq W_P/2$	$\Delta\Phi$	$\geq 4\pi$	$\geq 2\pi$	~ 0.5
	ΔT	≥ 2	≥ 1	
$W_S = W_P$	$\Delta\Phi$	$\sim 2\pi$	$\sim \pi$	1
	ΔT	~ 1	~ 0.5	
$W_S \geq 2.W_P$	$\Delta\Phi$	$\leq \pi$	$\leq \frac{\pi}{4}$	~ 4
	ΔT	≤ 0.5	≤ 0.1	

TAB. 1.2 – : *Dynamique du signal en variations de phase et de transmission suivant la taille relative des faisceaux sonde et pompe (W_S et W_P) pour un filtrage spatial avec un trou et un anneau ($r'_f = \frac{1.7W}{2}$). Valeurs obtenues pour un critère de lentille de Kerr toujours inférieur à 5%. La colonne sensibilité relative compare la détectivité de la mesure, suivant les géométries, par rapport au Z-scan.*

Il faut remarquer dans la table 1.2 que pour $W_S = W_P$ nous retrouvons les dynamiques typiques du Z-scan. Celui-ci nous sert de référence de sensibilité. La

sensibilité est la variation de flux minimum visible par le système. Elle est évaluée expérimentalement à partir de la plus petite tension mesurable sur la photodiode de mesure, et sur le rapport entre la variation de flux du système et sa variation de phase associée.

La première ligne correspond au cas de linéarité idéal. La sonde étant au moins deux fois plus petite que la pompe la dynamique est très importante. Par contre la sensibilité est réduite car la flèche de la lentille équivalente vue par la sonde est plus petite que la flèche réelle.

La dernière ligne correspond à une configuration non linéaire du système : la dynamique est faible. Cette situation ressemble à celle d'un masque de phase ponctuel placé au centre du faisceau. La grande sensibilité au déphasage de cette géométrie présente tout de même de l'intérêt. Elle nous a permis de mesurer le mode Raman E_2 de LiIO_3 qui est extrêmement faible (voir le chapitre 4.3.1.1) tout en sachant que la réponse électronique apparente sur le même signal est déformée.

Pour comprendre l'intérêt de ces valeurs de dynamique il faut savoir que le faisceau de pompe a une énergie de l'ordre du micro Joule, soit une densité d'énergie crête par impulsion au point focal légèrement supérieure à $1\text{GW}/\text{cm}^2$. L'effet Kerr électronique à ce niveau d'énergie induit un déphasage au centre du faisceau de l'ordre de π . L'effet Kerr lié à un mode Raman est au moins dix fois plus faible. Par contre, les effets en cascade peuvent être cinquante fois plus forts que le Kerr électronique. La dynamique de mesure demandée au détecteur est donc très importante et nous amène à jouer avec la géométrie pour trouver un compromis entre sensibilité et dynamique.

1.3.6 Mise en œuvre

L'expérience est fondée sur la symétrie circulaire des faisceaux. Le centrage des différents éléments sur un même axe optique est donc nécessaire au bon fonctionnement de l'expérience. De manière à s'assurer que le montage de l'expérience est optimum, l'installation de celle-ci suit le cahier des charges suivant :

Le faisceau sonde sert de référence. Son axe optique est celui de l'expérience. Une attention toute particulière a été portée à la qualité spatiale de ce faisceau. L'amplificateur à colorant qui suit l'oscillateur (voir la section 3.3.2) est construit de telle manière qu'il préserve l'intégralité du flux laser car toutes ses optiques sont placées de manière à réaliser sur chaque étage une adaptation de champ. De plus, il image à l'infini le miroir de sortie de l'oscillateur⁶. L'adaptation de champ est conservée sur l'ensemble de la propagation du laser dans le système expérimental. De plus le miroir de sortie du laser est imagé sur le trou de filtrage

6. Cette imagerie à l'infini permet, lors de la focalisation du laser, d'obtenir une tache focale la plus propre et donc la plus petite possible. Ce système est capable de produire un point focal de $10\mu\text{m}$ de diamètre.

du faisceau test. Ce trou de filtrage sert ensuite de plan source. L'image de ce plan définit la position z_0 du faisceau test pour l'expérience. De cette manière le front d'onde du faisceau sonde présente le moins d'aberrations possible au niveau de l'expérience.

La diode de mesure du signal est ensuite centrée sur le faisceau sonde. Une lentille de 50mm de focale est ensuite ajoutée pour focaliser le faisceau sonde sur la diode, de manière à en récupérer tout le flux. Le filtre spatial est ensuite placé juste devant la lentille, et centré précisément. L'ensemble, filtre, lentille et diode est placé à une distance au moins égale à 500mm du point focal de la sonde. Le détecteur est alors en place.

L'échantillon est placé en autocollimation sur le faisceau sonde. Son support permet de le déplacer le long de l'axe z de propagation de la sonde et d'orienter ses axes par rapport à la polarisation du laser. Pour trouver la position z_{max} qui donnera le maximum de signal nous effectuons un Z-scan en déplaçant manuellement l'échantillon autour du col de la sonde. Pour ce faire, l'énergie sur la sonde est portée à environ $1\mu J$. Une fois le maximum de signal trouvé l'échantillon est fixé pour le reste de l'expérience.

Le faisceau pompe est alors focalisé sur l'échantillon, et superposé à la sonde. De manière à s'assurer que sa taille sera supérieure ou égale à celle de la sonde, le faisceau pompe est focalisé avec une lentille de focale plus longue que celle qui focalise la sonde. Généralement, le faisceau de pompe a une taille égale ou légèrement supérieure à celle de la sonde.

Lorsque la pompe est dans l'infrarouge, les deux faisceaux de l'expérience sont strictement colinéaires grâce à l'usage d'un miroir dichroïque. Pour des longueurs d'onde identiques les faisceaux font entre eux un angle compris entre 1 et 2 degrés, ce qui nous permet de superposer deux ondes ayant la même polarisation facilement.

Généralement, après avoir aligné l'ensemble des éléments de l'expérience un test de linéarité, comme celui montré par la figure 1.9, permet de s'assurer rapidement que l'on peut commencer les mesures.

1.3.7 Cas particulier de la mesure avec une caméra vidéo

Le traitement du signal issu des images vidéo permettant de reconstruire le profil de phase induit, il n'y a pas de problème de linéarité de la mesure. En effet, connaissant le profil d'intensité du faisceau pompe pour l'avoir mesuré, nous pouvons calculer en chaque point la valeur de la non-linéarité induite.

1.4 Autres systèmes

Dans le groupe de recherche Optique Non Linéaire, il existe deux autres façons de mesurer des non-linéarités. J'utilise dans ce document des résultats expéri-

mentaux issus de ces techniques. Elles permettent de compléter mon travail en le confirmant ou en apportant des informations supplémentaires indispensables. Je décris donc ces techniques succinctement dans les sections suivantes pour mettre en évidence leurs différences et leurs intérêts propres.

1.4.1 Les réseaux induits

Cette expérience a été montée dans le but de faire des mesures de mélange à quatre ondes résolues en temps[36]. C'est la première expérience de notre groupe qui a mis en évidence la dynamique temporelle de phonons optiques. Elle se compose de deux faisceaux de pompe séparés d'un angle θ et d'un faisceau sonde parallèle à une des pompes. Les deux champs de pompe induisent la non-linéarité. L'angle θ entre les champs provoque une répartition de l'amplitude de la non-linéarité suivant un réseau de phase. Le champ sonde, à l'incidence de Bragg sur ce réseau, est diffracté dans la direction du signal. L'amplitude du signal est proportionnelle à l'efficacité du réseau donc au carré de la non-linéarité induite.

Le signal est enregistré en fonction du retard entre les pompes et la sonde pour obtenir la dynamique temporelle du phénomène.

Cette expérience est parfaitement adaptée à la mesure de non-linéarités liées au mélange à quatre ondes. En effet, il est possible de contrôler chacun des champs de l'interaction en direction dans l'espace et en polarisation. Elle permet donc de sonder tous les éléments des tenseurs Raman en les différenciant les uns des autres.

Cette technique donne un signal qui est quadratique par rapport à la non-linéarité. Ce signal est donc moins sensible aux faibles signaux qu'un signal linéaire. L'étude des dispersions polariton dans les matériaux est limitée par la géométrie et la longueur d'onde du laser ; il existe une valeur minimum du vecteur d'onde que l'on ne peut pas dépasser avec cette technique.

1.4.2 La porte Kerr

La porte Kerr est une ancienne technique pour mesurer des rotations de polarisation induites dans des milieux isotropes. Le milieu à étudier est placé sur le chemin d'un faisceau de sonde entre polariseur et analyseur croisés. Sans signal aucun flux ne sort du système ; pour toute rotation de la polarisation de la sonde dans l'échantillon on mesure un flux proportionnel au sinus carré de l'angle de la rotation. La rotation de polarisation est induite dans l'échantillon par un faisceau de pompe souvent polarisé à 45 deg de la polarisation de la sonde. Ce système est beaucoup étudié car il permet de faire des commutateurs tout optique plus rapides que ceux obtenus par effet Pockels.

L'étude des cristaux, qui sont des matériaux anisotropes, ne permet pas la réalisation de portes Kerr. Par contre, en considérant les polarisations des champs

pour étudier les coefficients non symétriques des tenseurs Raman, nous remarquons que le champ signal est émis orthogonalement au champ sonde. Il ne s'agit plus de rotation de polarisation, mais en alignant les axes cristallins avec les axes du polariseur et de l'analyseur, nous récupérons un signal qui ressemble à celui d'une porte Kerr et surtout qui permet de récupérer le signal issu de l'excitation d'un coefficient Raman non diagonal[37].

Le signal obtenu correspond à une détection homodyne : le signal est quadratique par rapport à la non-linéarité, et la dynamique de mesure est déterminée par le taux d'extinction du couple polariseur / analyseur.

En ajoutant un oscillateur local au signal, la détection devient hétérodyne : le signal contient alors une composante linéaire, proportionnelle à la non-linéarité, augmentant la sensibilité de la mesure. L'oscillateur local est obtenu en décroisant le couple polariseur / analyseur, initialement à 90 deg.

1.5 Conclusion

La mesure de déphasage par une expérience dite de mesure de *lentille de phase* permet de compléter les moyens de mesure à notre disposition. Ce système se caractérise par sa linéarité et sa dynamique. Nous avons introduit la notion de *critère de lentille de Kerr* pour prévoir et contrôler la réponse du système. Nous avons voulu ce critère le plus universel possible en le basant sur les aberrations géométriques, et en particulier sur les polynômes de Zernike.

Chapitre 2

Non linéarités optiques et variations de phase

Les non linéarités optiques sont généralement connues pour la génération de nouvelles fréquences, dont l'amplificateur paramétrique présenté au chapitre 3, est un bon exemple. Nous nous intéressons ici aux non linéarités ne générant pas de nouvelles fréquences mais agissant sur la phase.

La première partie de ce chapitre traite des phonons optiques. Ces modes de vibration apportent leur contribution au $\chi^{(3)}$ des matériaux et en particulier à sa composante faisant varier l'indice optique du matériau : le n_2 . Sont abordés dans cette partie le formalisme de création de phonons puis les problèmes expérimentaux concernant le calcul du vecteur d'onde.

La seconde partie pose les fondements théoriques de la création de modulation de phase liée à une cascade d'effets non linéaires du second ordre ou d'ordres supérieurs.

2.1 Les phonons optiques

Pour introduire les phonons dans les cristaux, il faut considérer la périodicité de leur géométrie, leur structure de maille.

En utilisant le formalisme de la mécanique quantique, l'état d'un cristal est décrit par une fonction d'onde solution de l'équation de Schrödinger du cristal [38].

Du fait de leur différence de masse, nous pouvons séparer les mouvements des électrons de ceux des noyaux, c'est l'approximation de Born-Oppenheimer. Pour l'étude des phonons nous considérons uniquement les mouvements de noyaux. La structure spatiale périodique des cristaux conditionne les modes de vibration des noyaux du réseau cristallin.

L'équation aux valeurs propres du mouvement s'écrit :

$$\left[- \sum_n \frac{\hbar}{2M_n} \nabla_n^2 + \psi_p(x) \right] X_\nu = E X_\nu \quad (2.1)$$

avec n l'indice des noyaux, M_n la masse du noyau n , $\psi_p(x)$ le potentiel assurant la cohésion du système, x la coordonnée d'espace, X_ν la fonction d'onde des noyaux du cristal, et E l'énergie.

En se plaçant dans l'approximation harmonique¹ nous considérons uniquement le terme du second ordre de $\psi_p(x)$ par rapport aux déplacements :

$$\psi_p(x_n) = \sum_m \frac{\delta^2 \psi_p(x_n)}{\delta u_{xnm}^2} u_{xnm} \quad (2.2)$$

avec u_{xn} le déplacement du noyau n dans la maille m .

Nous pouvons aussi considérer uniquement les interactions entre noyaux voisins ce qui limite n .

Dans un cristal ψ_p est périodique ; pour obtenir un mouvement global dans le cristal nous cherchons à rassembler les noyaux ayant le même mouvement à la phase près. Les solutions de l'équation du mouvement dans un potentiel harmonique auront donc une forme d'onde plane progressive :

$$u_{mn} = M_n^{-1/2} \cdot u_n \cdot e^{i(\Omega t - qma)} \quad (2.3)$$

où a est la dimension de la maille, et q le vecteur d'onde.

Ces ondes de mouvements de noyaux sont appelées phonons, le phonon étant un quantum d'énergie discret dans l'oscillateur harmonique de position du noyau.

L'ensemble des modes phononiques d'un cristal se divise en deux groupes : les phonons optiques et les phonons acoustiques. Les phonons acoustiques correspondent à des mouvements d'ensemble des mailles et ne conservent pas la position du centre de gravité des mailles. Il existe trois modes acoustiques possibles correspondant aux trois directions de l'espace. Les phonons optiques correspondent aux mouvements des noyaux dans les mailles. Ils conservent la position du centre de gravité dans la maille. Il y a $3n-3$ modes optiques possibles, n étant le nombre de noyaux dans la maille.

Dans la suite, nous nous intéresserons uniquement à la branche optique des phonons.

2.1.1 Vecteur d'onde et dispersion

Au réseau cristallin est associé le réseau réciproque des vecteurs d'onde, ou réseau de Brillouin. Celui associé à une maille s'appelle la première zone de

1. Déplacements faibles par rapport à la distance inter-atomique

Brillouin ; la dimension de cette zone est $[-\frac{\pi}{2a}, \frac{\pi}{2a}]$ où a est la dimension de la maille.

Les vecteurs d'onde² sont exprimés en cm^{-1} , la taille typique de la première zone de Brillouin est de l'ordre de $10^8 cm^{-1}$.

La fréquence de chaque mode phononique présente une dispersion en fonction du vecteur d'onde dans la première zone de Brillouin.

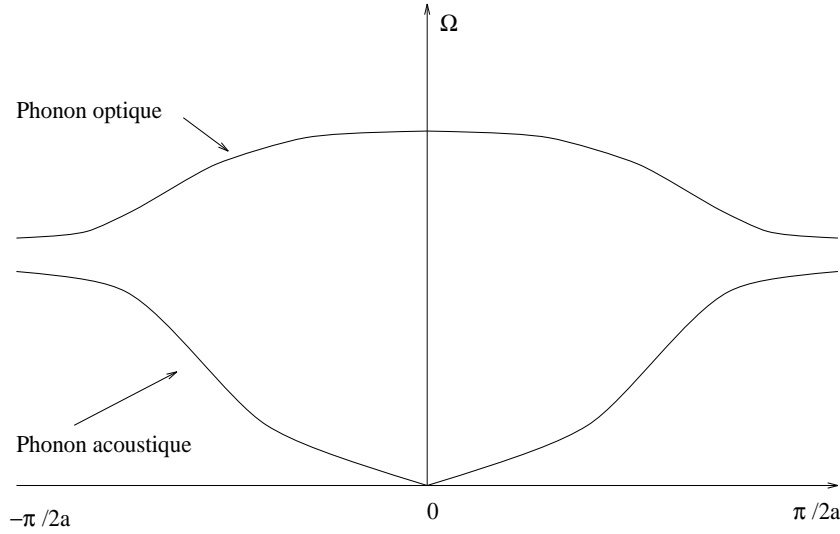


FIG. 2.1 –: *Dispersion des phonons dans la première zone de Brillouin*

La figure 2.1 schématise le comportement des modes acoustiques et optiques dans l'ensemble de la zone. La suite de l'étude portera sur le centre de cette zone, pour des valeurs de vecteurs d'onde $\leq 10^4 cm^{-1}$. Cette région présente une dispersion supplémentaire non apparente sur la figure 2.1 appelée dispersion polariton introduite à la section 2.1.4.

2.1.2 Groupes de symétrie et règles de sélection

Les cristaux sont classés par groupes. Ces groupes sont définis à partir de la géométrie de la maille cristalline. A chaque groupe correspond un nombre d'opérations de symétrie applicables pour lesquelles le milieu est invariant. Les modes phononiques sont classés suivant leur degré d'invariance par rapport à ces mêmes opérations de symétrie. Ils sont notés [39]:

A mode symétrique par rapport à l'ensemble des axes du cristal.

B mode antisymétrique par rapport à l'ensemble des axes du cristal.

2. Les vecteurs d'onde sont notés q pour les phonons et k pour les photons.

E mode ayant deux axes dégénérés.

etc.

Les modes correspondant à des mouvements de dipôles sont appelés des modes polaires, ils ont une activité infrarouge. Ils rayonnent à la fréquence d'oscillation du dipôle ce qui correspond à une émission dans l'infrarouge. L'orientation du dipôle dans l'espace définit la polarisation du champ infrarouge [39].

Les caractéristiques des modes Raman et leur activité infrarouge sont déduites des propriétés de symétrie des cristaux.

Si un mode Raman est polaire, il se dédouble en deux branches : quand la polarisation est orientée dans le sens de propagation du mode il s'agit de la branche longitudinale, le mode est alors appelé mode LO. Si la polarisation est orthogonale à la propagation du mode, il s'agit d'un mode transverse. Il est appelé mode TO.

Ces modes polaires sont à l'origine des polaritons (voir la section 2.1.4).

2.1.3 Le $\chi^{(3)}$ et les modes Raman

Pour mettre en évidence la relation entre un mode Raman et l'optique non linéaire il faut considérer le processus d'induction du phonon par des champs laser.

L'équation de mouvement d'un mode de vibration optique est notre point de départ pour calculer l'équation d'onde du phonon [40-42]. Notons Q ses coordonnées normales. En supposant que le champ laser reste inchangé lors de la création du phonon, nous avons l'équation suivante :

$$\frac{\delta^2 Q}{\delta t^2} + 2\gamma \frac{\delta Q}{\delta t} + \Omega^2 Q = \frac{1}{2} N (\delta\chi / \delta Q)_0 : \Psi_L \Psi_L \quad (2.4)$$

avec Ω et γ la fréquence et l'amortissement du phonon, N la densité d'oscillateurs, $\delta\chi / \delta Q$ le différentiel du tenseur de polarisabilité, Ψ_L le champ électrique issu du laser [41].

Pour simplifier les expressions, nous supposerons maintenant que tous les champs se propagent suivant l'axe z et qu'ils sont tous polarisés suivant l'axe y du cristal. Ce calcul est donc valable pour le cas de l'induction de phonons avec un seul faisceau de pompe ; il faudra voir ensuite comment généraliser l'expression à des configurations non-colinéaires.

En supposant que l'impulsion laser a une forme temporelle gaussienne limitée par la transformée de Fourier³, le champ laser s'écrit :

$$\Psi_L = A e^{-(t-zn/c)^2/2\tau_L^2} \cos[\omega_L(t - zn/c)] \quad (2.5)$$

avec A l'amplitude du champ électrique, la durée de l'impulsion τ_L , ω_L la fréquence centrale et $1/\tau_L$ la largeur spectrale dans la limite de Fourier. En substituant dans l'équation 2.4 le champ Ψ_L donné par l'équation 2.5 nous obtenons :

$$\frac{\delta^2 Q}{\delta t^2} + 2\gamma \frac{\delta Q}{\delta t} + \Omega^2 Q = \frac{1}{4} N \chi' A^2 e^{-(t-zn/c)^2/\tau_L^2} \quad (2.6)$$

Une solution de l'équation 2.6 obtenue en utilisant les fonctions de Green donne pour des atténuations faibles :

$$Q(z > 0, t > 0) = Q_0 e^{-\gamma(t-zn/c)} \sin[\Omega(t - zn/c)] \quad (2.7)$$

Le vecteur d'onde du phonon est $q = \frac{n\Omega}{c} \vec{z}$ et son amplitude Q_0 s'écrit :

$$\begin{aligned} Q_0 &= \pi^{1/2} N \chi' A^2 \tau_L e^{-\Omega^2 \tau_L^2/4} / 4\Omega \\ &= 2\pi I N \chi' e^{-\Omega^2 \tau_L^2/4} / \Omega n c \end{aligned} \quad (2.8)$$

avec $I = ncA^2\tau_L/8\pi^{1/2}$ l'intensité intégrée sur le temps de l'impulsion. Nous remarquons que pour des durées d'impulsions trop grandes le terme $e^{-\Omega^2 \tau_L^2/4}$ limite l'amplitude du phonon. Une excitation impulsionnelle doit être faite avec une impulsion d'une durée inférieure à la période du phonon.

Pour étendre l'équation 2.7 au cas de l'induction de phonons dans une configuration de vecteurs d'onde non colinéaires il faut considérer la direction de \vec{q} en fonction des champs laser et de la géométrie du cristal. Le calcul du vecteur d'onde fait l'objet de la section 2.2.

Le terme $N\chi'$ de l'équation 2.6, correspondant à la section efficace Raman est homogène à la partie imaginaire de $\chi^{(3)}$ [39].

Lors de l'induction par une impulsion optique, le phonon est une réponse causale du matériau, il a donc une partie réelle associée calculable par les relations de Kramers-Krönig (équations 2.10).

Les relations de Kramers-Krönig permettent de calculer la partie réelle de la réponse spectrale d'un système linéaire lorsque l'on connaît sa partie imaginaire et inversement⁴. Elles sont liées à la causalité de la réponse temporelle du système[43].

3. La durée et la largeur spectrale de l'impulsion sont décrites par la relation : $\Delta t \Delta \nu = \hbar$.

4. Ces relations servent en optique à connaître la phase d'une onde réfléchie en fonction du facteur de réflexion.

Dans le domaine spectral, le $\chi^{(3)}$ se décompose en ses parties réelle et imaginaire :

$$\chi^{(3)}(\omega) = \Re\chi^{(3)}(\omega) + i\Im\chi^{(3)}(\omega) \quad (2.9)$$

Les relations de Kramers-Krönig⁵ s'écrivent alors :

$$\Re\chi^{(3)}(\omega) = \frac{2}{\pi}P \int_0^\infty \frac{s \cdot \Im\chi^{(3)}(s)}{s^2 - \omega^2} ds \quad (2.10)$$

$$\Im\chi^{(3)}(\omega) = -\frac{2\omega}{\pi}P \int_0^\infty \frac{\Re\chi^{(3)}(s)}{s^2 - \omega^2} ds \quad (2.11)$$

avec $P \int$ la partie principale de l'intégrale[44].

Dans le domaine temporel, nous noterons le $\chi^{(3)}$: $\tilde{\chi}^{(3)}$. A celui-ci est associée une variation d'indice optique du milieu notée n_2 :

$$n_2 = \frac{3\tilde{\chi}^{(3)}}{4c\varepsilon_0 n^2} \quad (2.12)$$

avec c la vitesse de la lumière dans le vide et n l'indice optique *classique* du matériau.

Au phonon est associé un $\chi^{(3)}$. Celui-ci provoque une variation d'indice fonction du temps notée n_2 .

Chaque mode Raman est représenté par un tenseur 3×3 . Chaque élément correspond à l'efficacité du mode dans une direction spatiale donnée. Ces tenseurs ont été calculés par de nombreux auteurs pour toutes les classes cristallines[39].

Prenons pour exemple un mode A du groupe C_6^6 , correspondant au cristal de LiIO_3 :

$$A(z) = \begin{bmatrix} a_{(x,x)} & \cdot & \cdot \\ \cdot & a_{(y,y)} & \cdot \\ \cdot & \cdot & b_{(z,z)} \end{bmatrix} \quad (2.13)$$

La notation $A(z)$ signifie que le mode est polaire. (z) est l'abréviation du vecteur $(0,0,z)$ donnant la direction de polarisation du rayonnement émis dans l'infrarouge. Les coefficients non nuls sont sur la diagonale, alors que pour un mode dissymétrique comme le mode non polaire E_2 du même cristal, les coefficients ne sont pas tous sur la diagonale:

$$E_2 = \begin{bmatrix} e_{(x,x)} & -f_{(x,y)} & \cdot \\ -f_{(y,x)} & -e_{(y,y)} & \cdot \\ \cdot & \cdot & \cdot \end{bmatrix} \quad (2.14)$$

5. Ces relations ont été établies pour un χ linéaire mais sont applicables à des χ non linéaires.

Pour induire un mode Raman il faut deux champs Ψ_{P_1} et Ψ_{P_2} dits de pompe. Par exemple, pour atteindre le coefficient $-f$ du mode E_2 il faut des champs de pompe polarisés dans les directions x et y du cristal. De même, pour la mesure de ce mode il faut un champ de sonde Ψ_T polarisé suivant x et mesurer un champ signal suivant y , ou le contraire. Le processus d'induction puis lecture correspond donc à une interaction à quatre ondes telle que :

$$\Psi_S = P^{(3)} = \chi^{(3)} \cdot \Psi_{P_1} \cdot \Psi_{P_2}^* \cdot \Psi_T \quad (2.15)$$

Nous pouvons remarquer que lors de l'induction impulsionnelle, une variation d'indice optique est associée à la section efficace du phonon. Il est alors possible de mesurer la fréquence du phonon en mesurant la période d'oscillation de l'indice optique.

Il s'agit alors de mesures temporelles, équivalentes à des mesures spectroscopiques, mais sans avoir à mesurer des spectres.

Dans l'approximation où la durée de l'impulsion laser est beaucoup plus courte que la période du phonon, l'amplitude Q_0 de l'oscillation est maximum (équation 2.8) et nous avons la réponse temporelle à un Dirac du phonon.

2.1.4 Le polariton

Certains modes phononiques sont dits polaires. Il existe un dipôle électrique associé au phonon. Un dipôle oscillant est une onde électromagnétique appelée onde de polarisation; elle rayonne un photon [45, 46]. La fréquence du photon ainsi généré est la même que celle du phonon qui la crée. Lorsque les vecteurs d'onde du phonon et du photon sont proches il apparaît un couplage entre les deux oscillateurs. Ce couplage est appelé *polariton* [47].

Le polariton est une quasi-particule composée d'un photon et d'un phonon dans notre cas. Les polaritons peuvent être aussi des couplages exciton-photon ou plasmon-photon [44, 39]. Les vibrations de mailles dans les cristaux étaient calculées avant 1951 en supposant des interactions électrostatiques entre les ions. De ces calculs résulte la relation dite de Lyddane-Sachs-Teller liant les fréquences des phonons transverses et longitudinaux [48]:

$$\frac{\Omega_L^2}{\Omega_T^2} = \frac{\varepsilon_0}{\varepsilon_\infty} \quad (2.16)$$

Une approche prenant en compte les interactions entre les vibrations de mailles d'un cristal ionique diatomique et d'une onde électromagnétique retardée, a permis de mieux comprendre les polaritons. Ce calcul utilisant le traitement classique de Huang permet de mettre en évidence la double nature du polariton: onde électromagnétique et vibration mécanique de maille cristalline. Ces calculs ont été menés pour des cristaux uniaxes [39] et pour des cristaux biaxes [49].

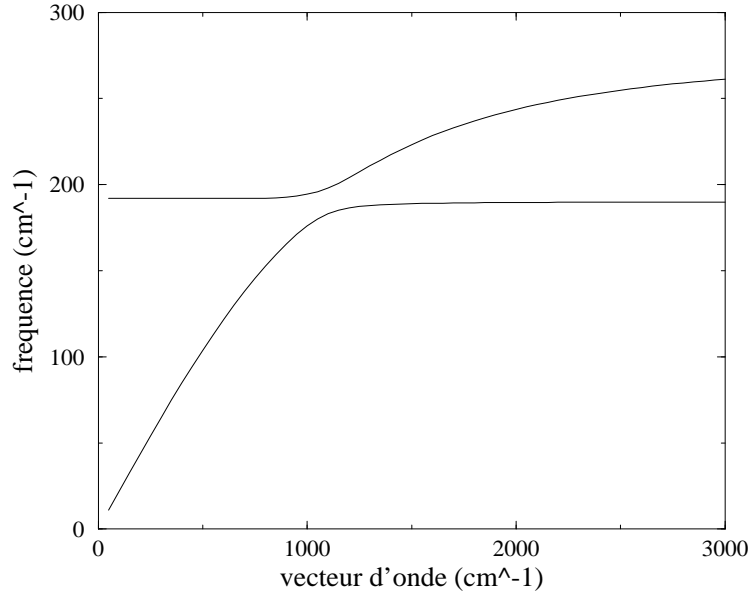


FIG. 2.2 –: *Exemple de dispersions polariton de deux premiers modes A_1 de $KNbO_3$. Seuls les modes TO sont représentés.*

Les équations de Huang s'écrivent:

$$\ddot{Q} = B^{11}Q + B^{12}\Psi \quad (2.17)$$

$$P = B^{21}Q + B^{22}\Psi \quad (2.18)$$

avec Q les coordonnées de déplacement du dipôle ion-cation, P la polarisation électrique de la cellule élémentaire, Ψ le champ électrique macroscopique. Les coefficients B^{ij} sont liés aux forces liant les éléments du dipôle entre eux et avec leur environnement. Ces équations ne présentent pas de couplage avec le champ infrarouge et ne permettent pas de considérer la dispersion polariton.

Les modes transverses optiques (TO) présentent un couplage avec le champ infrarouge lorsque leurs fréquences et vecteurs d'onde sont proches. A ce moment il est possible de réécrire les équations de Huang 2.17 et 2.18 en y ajoutant le couplage [49]:

$$\ddot{Q} = B^{11}Q + B^{12}\Psi \quad (2.19)$$

$$P = B^{21}Q + B^{22}\Psi \quad (2.20)$$

$$\varepsilon = 1 + 4\pi P/\Psi \quad (2.21)$$

En combinant les équations 2.19 et 2.20 dans 2.21 nous obtenons:

$$\varepsilon(\Omega) = 1 + 4\pi B^{22} + 4\pi \frac{B^{12}B^{21}}{-B^{11} - \Omega^2} \quad (2.22)$$

à comparer à la relation de dispersion en fréquence de la susceptibilité électrique:

$$n^2 = \varepsilon(\Omega) = \varepsilon_\infty + (\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty) \frac{\Omega_0^2}{\Omega_0^2 - \Omega^2} \quad (2.23)$$

avec $\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty = 4\pi\rho = s$ la force d'oscillateur du mode et Ω_0 la fréquence d'absorption infrarouge.

On déduit de la comparaison des équations 2.22 et 2.23 les coefficients B^{ij} :

$$B^{11} = -\Omega_0^2 \quad (2.24)$$

$$B^{12} = B^{21} = [(\varepsilon_0 - \varepsilon_\infty)/4\pi]^{1/2} \Omega_0 \quad (2.25)$$

$$B^{22} = (\varepsilon_\infty - 1)/4\pi \quad (2.26)$$

En considérant l'effet du champ retardé et en utilisant les équations de Maxwell ⁶ pour le champ Ψ avec les équations de Huang 2.19 et 2.20 une solution sous forme d'onde plane apparaît:

$$\vec{\Psi} = -4\pi \frac{\vec{q}(\vec{q} \wedge \vec{P}) - (\Omega^2/c^2)\vec{P}}{q^2 - \Omega^2/c^2} \quad (2.27)$$

avec q le vecteur d'onde.

L'effet du champ retardé est lié à l'abandon de l'approximation électrostatique qui dit que $\nabla \wedge \Psi = 0$. En prenant $\nabla \wedge \Psi = -\frac{1}{c} \frac{\delta H}{\delta t}$ et $\nabla \wedge H = -\frac{1}{c} \frac{\delta D}{\delta t}$ avec $D = \Psi + 4\pi P$ [39].

Les solutions des équations 2.19, 2.20 et 2.27 donnent pour le mode optique longitudinal (LO):

$$\Omega^2 = \left(\frac{\varepsilon_0}{\varepsilon_\infty}\right) \Omega_0^2 \quad (2.28)$$

et pour le mode optique transverse (TO):

$$\frac{q^2 c^2}{\Omega^2} = \frac{\varepsilon_0 \Omega_0^2 - \varepsilon_\infty \Omega^2}{\Omega_0^2 - \Omega^2} \quad (2.29)$$

Nous reconnaissons la relation de Lyddane-Sachs-Teller pour le mode LO d'équation 2.28 qui donne une dispersion nulle. L'équation 2.29 donne la dispersion des modes TO dont la figure 2.2 est un exemple.

6. Les équations de Maxwell complètes sont: $\nabla \wedge \Psi = -\frac{\delta B}{\delta t}$ $\nabla \cdot D = \rho$ avec Ψ le vecteur champ électrique, H le vecteur champ magnétique, D le vecteur déplacement, B le vecteur induction magnétique, ρ la densité de charge et j la densité de courant.

L'équation 2.29 a pour asymptotes les droites de pentes $c/\sqrt{\varepsilon_0}$ et $c/\sqrt{\varepsilon_\infty}$. Connaître la courbe de dispersion polariton d'un mode TO c'est connaître la variation de la constante diélectrique ε de ε_0 à ε_∞ ou plus précisément connaître la variation d'indice optique du milieu dans le voisinage des raies d'absorption infrarouge.

2.2 Vecteurs d'onde et phonons

Le vecteur d'onde issu de l'équation 2.7 correspond à une excitation *libre*. Nos expériences correspondent à du Raman cohérent, pour lequel la géométrie et la polarisation des faisceaux laser conditionnent le vecteur d'onde du phonon. Cette section présente donc comment est déterminé le vecteur d'onde des phonons induits lors d'expériences impulsives.

Le vecteur d'onde d'une onde ω dans un matériau d'indice n est $k = \frac{n\omega}{c}$ où c est la vitesse de la lumière dans le vide. Le vecteur d'onde d'un photon est directement lié à son moment $p = mc$. Son énergie est telle que $\hbar\omega = mc^2$. Nous en déduisons $\vec{p} = \hbar\frac{\omega}{c}\vec{u} = \hbar\vec{k}$. La quantité $\hbar\vec{k}$ est appelée quasi moment à cause de la masse nulle du photon. Le calcul du vecteur d'onde du phonon repose sur la conservation des moments:

$$\hbar\vec{k}_L - \hbar\vec{k}_S = \hbar\vec{q} \quad (2.30)$$

$$\vec{k}_L - \vec{k}_S = \vec{q} \quad (2.31)$$

avec \vec{q} le vecteur d'onde du phonon.

Les expériences de diffusion Raman [50] distinguent entre les phonons de type Stokes : $\omega_L - \omega_S = +\Omega$, et anti Stokes : $\omega_L - \omega_S = -\Omega$, correspondant à des angles de diffusion différents.

La mesure par diffusion Raman à 90 deg permet de mesurer des phonons avec des vecteurs d'onde de l'ordre de $\sim 10^5 \text{ cm}^{-1}$. Dans nos expériences nous travaillons dans le domaine de la diffusion Raman colinéaire (*Forward Raman Scattering*) soit des vecteurs d'onde de 0 à quelques 10^3 cm^{-1} . Cela correspond à la partie centrale de la première zone de Brillouin.

Ces expériences font donc une sélection des phonons et de leur vecteur d'onde en mesurant des fréquences et des angles de diffusion.

Les expériences résolues en temps utilisent des impulsions femtosecondes. A ces impulsions est associé un spectre ayant plusieurs nanomètres de large. Une sélection du vecteur d'onde par la détermination de la direction de diffusion d'une fréquence signal est donc impossible.

Le vecteur d'onde d'un phonon, lors d'une expérience impulsionnelle, est déterminé par les champs excitateurs, ou champs de pompe.

Lors d'un processus d'interaction à quatre ondes d'induction et de lecture d'un phonon, à chaque champ correspond une fréquence ω_i :

$$\Psi_S = P^{(3)}(\omega_S) = \chi^{(3)}(\omega_S^*; \omega_{P_1}, \omega_{P_2}^*, \omega_T) \cdot \Psi_{P_1}(\omega_{P_1}) \cdot \Psi_{P_2}^*(\omega_{P_2}) \cdot \Psi_T(\omega_T) \quad (2.32)$$

avec la conservation de l'énergie qui impose que $\omega_{P_1} - \omega_{P_2} + \omega_T - \omega_S = 0$.

Si la fréquence du phonon est Ω , les combinaisons de fréquences possibles pour le mélange à quatre ondes sont au nombre de quatre. Elles sont regroupées dans la table 2.1.

	ω_{P_1}	ω_{P_2}	ω_T	ω_S	
Cas 1	ω_1	ω_1	ω_1	ω_1	ISRS
Cas 2	ω_1	ω_1	ω_2	ω_2	ISRS
Cas 3	ω_1	$\omega_1 \pm \Omega$	ω_1	$\omega_1 \pm \Omega$	CARS
Cas 4	ω_1	$\omega_1 \pm \Omega$	ω_2	$\omega_2 \pm \Omega$	CARS

TAB. 2.1 –: *Configurations de fréquences possibles pour la mesure d'un phonon de fréquence Ω avec une expérience de mélange à quatre ondes.*

La différence entre les fréquences du signal et de la sonde est identique à celle entre les fréquences de pompe.

Dans la table 2.1, nous avons distingué les cas 1 et 2 des cas 3 et 4.

- Les cas 1 et 2 correspondent à une induction impulsionnelle du phonon communément appelée ISRS⁷ ; c'est la longueur d'onde centrale du laser qui est considérée pour le calcul du vecteur d'onde.
- Nous reconnaissons dans les cas 3 et 4 la configuration de fréquences classique du CARS⁸. En effet, nous faisons des expériences avec des impulsions courtes, donc des spectres larges. Si la fréquence du phonon Ω est comprise dans la largeur spectrale de l'impulsion, la création du phonon passe alors par des longueurs d'onde discrètes prises dans le spectre du laser. Le calcul du vecteur d'onde tient alors compte de ces longueurs d'onde. Le cas 3 correspond à une expérience CARS avec un seul laser femtoseconde de fréquence centrale ω_1 , alors que le cas 4 nécessite deux lasers femtosecondes aux fréquences centrales ω_1 et ω_2 .

Le transfert d'énergie entre le laser et le phonon est évident pour une expérience CARS ; il l'est moins pour une expérience ISRS. Pour mieux le comprendre, nous travaillons sur des expériences mesurant les spectres des champs de l'interaction. Je ne développerai donc pas plus ce sujet.

7. Impulsive Stimulated Raman Scattering.

8. Coherent Antistokes Raman Scattering.

Nos expériences regroupent des techniques d'induction à un ou deux faisceaux pour des modes phononiques symétriques et non symétriques. Pour traiter cet ensemble d'expériences je commence le calcul dans le cas le plus général, c'est-à-dire l'induction à deux faisceaux de phonons non symétriques mettant en évidence des composantes parallèle et transverse du vecteur d'onde. Ensuite je traite le cas des phonons symétriques qui correspondent à une situation dégénérée du cas précédent.

2.2.1 Phonons non symétriques

Pour induire des phonons polaritons non symétriques, il faut des champs de pompe de polarisations linéaires et orthogonaux. La figure 2.3 montre les vecteurs d'onde \vec{k}_1 et \vec{k}_2 des deux champs Ψ_1 et Ψ_2 de pompe ainsi que l'angle⁹ $\theta = \widehat{(\vec{k}_1, \vec{k}_2)}$ entre les pompes [51]. Les indices du cristal que voient les champs de pompes Ψ_1 et

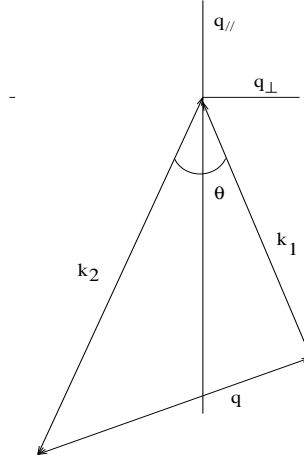


FIG. 2.3 –: Géométrie des vecteurs d'ondes pour l'induction de phonon

Ψ_2 sont respectivement n_1 et n_2 , avec généralement $n_1 \neq n_2$. Lors de la réfraction dans le cristal l'angle $\theta_{\vec{k}_1}$ entre \vec{k}_1 et la normale à la surface du cristal et $\theta_{\vec{k}_2}$ pour \vec{k}_2 vont être différents:

$$n_1 \sin(\theta_{\vec{k}_1}) = \sin(\theta/2) \text{ et } n_2 \sin(\theta_{\vec{k}_2}) = \sin(\theta/2)$$

Le vecteur d'onde q du phonon induit peut se décomposer suivant deux directions parallèle q_{\parallel} et transverse q_{\perp} par rapport à la bissectrice de $\theta = \widehat{(\vec{k}_1, \vec{k}_2)}$:

$$q_{\perp} = 2\omega_L \sin(\theta/2) \quad (2.33)$$

$$q_{\parallel} = \omega_L ([n_1^2 - \sin^2(\theta/2)]^{1/2} - [n_2^2 - \sin^2(\theta/2)]^{1/2}) \quad (2.34)$$

9. Cet angle correspond à l'angle entre les champs de pompe en dehors du cristal.

avec ω_L la longueur d'onde centrale du laser de pompe. Nous remarquons que, grâce à la réfraction et en ayant choisi l'angle initial en dehors du cristal, q_\perp est indépendant des indices.

La longueur d'onde prise en compte pour ce calcul correspond au cas *impulsionnel* d'une expérience de type ISRS de la table 2.1, page 43.

Nous nous intéressons maintenant au cas de la mesure CARS avec des impulsions, un cas qui distingue deux longueurs d'ondes espacées de la longueur d'onde du phonon dans les spectres des champs de pompe.

L'équation 2.34 laisse la place à une formulation plus complète qui tient compte de la dispersion d'indice dans le cristal lorsque nous considérons les longueurs d'onde utiles pour induire un phonon de fréquence Ω .

Nous obtenons deux équations pour la composante parallèle du vecteur d'onde : $q_\parallel^a = k_{n_1}^a - k_{n_2}^a$ et $q_\parallel^b = k_{n_2}^b - k_{n_1}^b$. Ces deux équations sont indissociables car les champs de pompe ont un rôle symétrique (ils contiennent les deux longueurs d'ondes du CARS classique dans leur spectre). Pour une induction de phonons Stokes nous avons :

$$q_\parallel^a = (\omega_L + \Omega)[n_1^2(\omega_L + \Omega) - \sin^2(\theta/2)]^{1/2} \quad (2.35)$$

$$\begin{aligned} & - (\omega_L)[n_2^2(\omega_L) - \sin^2(\theta/2)]^{1/2} \\ q_\parallel^b & = (\omega_L + \Omega)[n_2^2(\omega_L + \Omega) - \sin^2(\theta/2)]^{1/2} \quad (2.36) \\ & - (\omega_L)[n_1^2(\omega_L) - \sin^2(\theta/2)]^{1/2} \end{aligned}$$

Les deux équations 2.35 et 2.36 donnent des résultats différents. Les spectroscopistes qui font de la diffusion Raman en avant, ont rencontré ce problème pour les dispersions polaritons de modes non diagonaux [52, 39]. Deux configurations croisées donnent apparemment des dispersions différentes¹⁰. Ces différences ne sont pas liées à une dissymétrie de la dispersion polariton mais bien à des vecteurs d'ondes différents liés à la biréfringence du milieu. Lors de nos expériences, les deux champs de pompe ont des rôles symétriques. Ainsi nous induisons les deux coefficients symétriques par rapport à la diagonale du tenseur de polarisabilité à chaque fois, chacun avec un vecteur d'onde différent.

En effet, en prenant l'exemple du mode E(y) du quartz qui a pour tenseur Raman :

$$E(y) = \begin{bmatrix} . & -c & -d \\ -c & . & . \\ -d & . & . \end{bmatrix} \quad (2.37)$$

nous avons par exemple $\chi_{xxzz}^{(3)} = \chi_{xzzx}^{(3)}$, les coefficients du tenseur 2.37 sont symétriques par rapport à la diagonale. Par contre le vecteur d'onde associé au phonon

10. Voir la section 2.1.4 sur les polaritons et la section 2.1.2 sur le tenseur de polarisabilité.

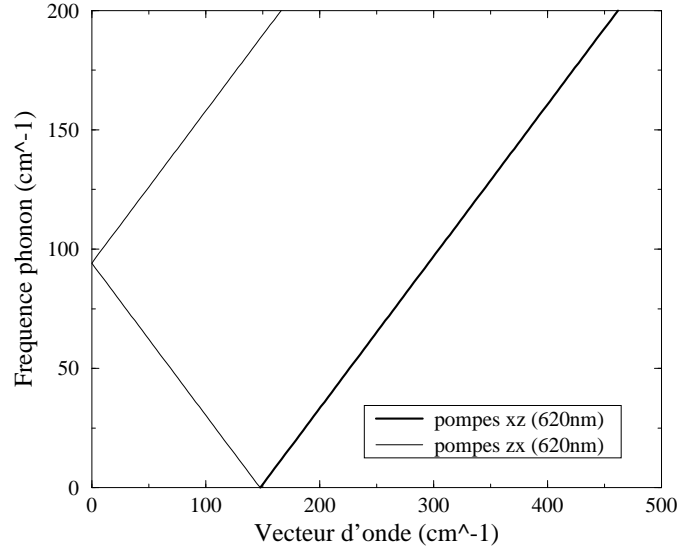


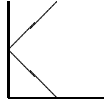
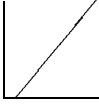
FIG. 2.4 –: *Dispersion du vecteur d'onde d'un mode non symétrique fonction de la fréquence du phonon et de la géométrie d'induction en prenant pour exemple le coefficient -d du mode $E(y)$ du quartz sans angle entre les champs de pompe.*

induit avec le couple de pompes polarisées xz est égal à $q^a = \sqrt{q_{\parallel}^2 + q_{\perp}^2}$ alors que celui associé au couple zx est égal à $q^b = \sqrt{q_{\parallel}^2 + q_{\perp}^2}$. Ces deux valeurs sont différentes comme le montre la figure 2.4.

Lors de la lecture nous avons choisi le couple xz , soit x pour la polarisation du champ signal et z pour celle du champ sonde. Si l'on conserve l'accord de phase entre le phonon, la sonde et le signal nous mesurons préférentiellement le coefficient du tenseur 2.37 correspondant au $\chi_{xxzz}^{(3)}$ pour lequel le vecteur d'onde est $q^a = \sqrt{q_{\parallel}^2 + q_{\perp}^2}$. Pour mesurer l'autre coefficient en respectant l'accord de phase il faut se mettre dans la configuration inverse correspondant à $\chi_{zzxx}^{(3)}$. Comme les deux coefficients correspondent au même mode et ont la même valeur l'intérêt de cette double expérience est de faire la mesure pour deux valeurs différentes du vecteur d'onde, donc pour deux valeurs de la fréquence polariton.

L'ensemble des cas possibles est rassemblé dans le tableau 2.2.

Pour tenir compte du fait qu'il existe une infinité de paires de fréquences

Cas zx (figure 2.4)	Cas xz (figure 2.4)
	
$n_1(\omega_L + \frac{\Omega}{2}) - n_2(\omega_L - \frac{\Omega}{2})$	$n_2(\omega_L + \frac{\Omega}{2}) - n_1(\omega_L - \frac{\Omega}{2})$

TAB. 2.2 –: Les différents cas de vecteurs d'onde dans une configuration CARS.

excitant le phonon dans la largeur spectrale du laser nous pouvons écrire :

$$\begin{aligned}
 q_{\parallel}^{a,b}(\omega, \Omega, \theta) &= \int_{+\infty}^{-\infty} \frac{I(\omega + \Omega).I(\omega)}{I(\omega_L + \Omega).I(\omega_L)} d\omega \\
 &\cdot \{ \pm(\omega \pm \Omega)[n_1^2(\omega \pm \Omega) - \sin^2(\theta/2)]^{1/2} \\
 &\mp (\omega)[n_2^2(\omega) - \sin^2(\theta/2)]^{1/2} \}
 \end{aligned} \tag{2.38}$$

avec $I(\omega)$ l'intensité spectrale du laser.

L'intégration sur la largeur spectrale du laser de pompe entraîne une distribution de valeurs du vecteur d'onde autour d'une valeur centrale. Cette distribution peut provoquer un amortissement supplémentaire du phonon [51].

Cette formulation permet de mettre en évidence la dispersion du vecteur d'onde en fonction de la valeur de la fréquence du phonon Ω et de la largeur spectrale du laser (Le résultat est comparable à celui de la figure 2.7 calculée pour les modes symétriques).

Quelle que soit la façon de calculer le vecteur d'onde, il apparaît toujours une contribution liée à la biréfringence du matériau. Celle-ci est fonction de la longueur d'onde, et, dans la majorité des matériaux, elle diminue lorsque la longueur d'onde augmente. Pour réduire la biréfringence, nous avons donc tout intérêt à travailler dans le proche infrarouge plutôt que dans le visible. La figure 2.5 prend pour exemple le mode non symétrique B_2 de KNbO_3 ; elle montre l'utilité d'une source laser dans l'infrarouge proche, permettant de réduire d'un facteur 2 la valeur minimum du vecteur d'onde que nous pouvons induire. Cette considération a, en partie, motivé la réalisation d'une source accordable dans l'infrarouge proche : l'amplificateur paramétrique.

2.2.2 Phonons symétriques

Le vecteur d'onde des phonons symétriques peut être considéré comme un sous-ensemble des vecteurs d'onde des phonons non symétriques. Nous pouvons conserver les équations 2.33 et 2.34 pour l'induction de type ISRS et les équations 2.33, 2.35 et 2.36 pour le type CARS. Les polarisations des champs de pompe étant parallèles à un des axes optiques du matériau nous avons $n_1 = n_2$.

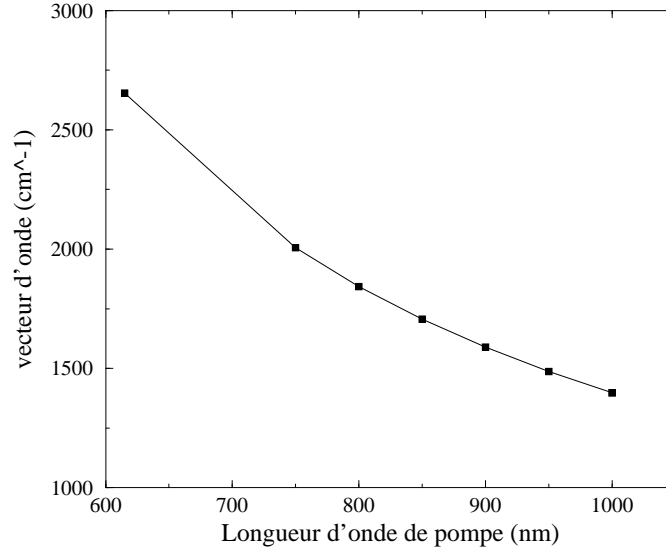


FIG. 2.5 –: Dispersion du vecteur d'onde du mode B_2 de $KNbO_3$ en fonction de la longueur d'onde de pompe. Les points correspondent à des longueurs d'onde dans la zone accessible par le laser et l'amplificateur paramétrique.

Nous réécrivons alors, dans le cas ISRS, les équations 2.33 et 2.34 de manière à montrer qu'il ne subsiste que la composante transverse du vecteur d'onde :

$$q_{\perp} = 2\omega_L \sin(\theta/2) \quad (2.39)$$

$$q_{\parallel} = \omega_L([n_1^2 - \sin^2(\theta/2)]^{1/2} - [n_1^2 - \sin^2(\theta/2)]^{1/2}) = 0 \quad (2.40)$$

Nous remarquons alors que le vecteur d'onde est uniquement fonction de la longueur d'onde du laser et de l'angle θ entre les champs de pompe. Le vecteur d'onde est nul lorsque cet angle est nul ; le phonon est au centre de la première zone de Brillouin.

Dans le cas CARS, nous conservons l'équation 2.33 et les équations 2.35 et 2.36 s'égalisent. Nous obtenons alors :

$$q_{\perp} = 2\omega_L \sin(\theta/2) \quad (2.41)$$

$$q_{\parallel} = (\omega_L + \Omega)[n_1^2(\omega_L + \Omega) - \sin^2(\theta/2)]^{1/2} - (\omega_L)[n_1^2(\omega_L) - \sin^2(\theta/2)]^{1/2} \quad (2.42)$$

Lors d'une expérience de mesure de lentille de Kerr à un seul faisceau de

pompe, $\theta = 0$ l'expression du vecteur d'onde se simplifie pour devenir:

$$q_{\perp} = 0 \quad (2.43)$$

$$q_{\parallel} = (\omega_L + \Omega)n_1(\omega_L + \Omega) - \omega_L n_1(\omega_L) \quad (2.44)$$

$$q = q_{\parallel} \quad (2.45)$$

Le vecteur d'onde résultant est dirigé dans la direction de propagation des champs pompes et test. Nous sommes donc face à deux valeurs possibles du vecteur d'onde suivant que nous sommes dans le cas impulsional ISRS ou le cas CARS.

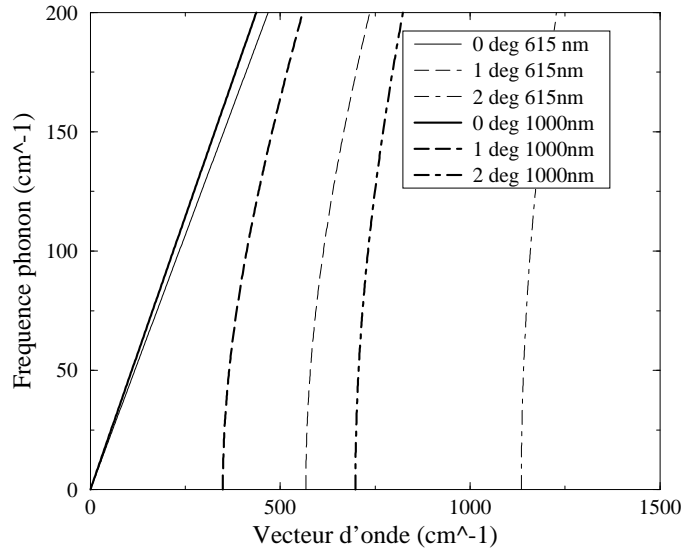


FIG. 2.6 –: *Dispersion des vecteurs d'onde des modes symétriques de KNbO₃*

La figure 2.6 prend pour exemple les modes A de KNbO₃ et donne des vecteurs d'onde calculés dans le cas CARS. Ces courbes sont comparables à celles de résultats obtenus en Raman [50]. Nous remarquons que le vecteur d'onde dépend fortement de l'angle θ entre les pompes et la fréquence du phonon Ω . Il dépend aussi de la longueur d'onde centrale du laser. En effet l'exemple montre qu'entre un laser à 615nm et un autre à 1 μ m les vecteurs d'ondes sont très différents. Plus le laser est loin dans l'infrarouge plus le vecteur d'onde est faible. Cela est dû à une dispersion plus faible des indices dans l'infrarouge par rapport au visible.

Les courbes de la figure 2.6 sont très différentes de celles obtenues dans le cas ISRS [53]. Le vecteur d'onde du cas impulsional n'est pas fonction de la fréquence du phonon et correspond à la valeur du vecteur d'onde du cas CARS pour une fréquence nulle du phonon.

En intégrant le vecteur d'onde sur le spectre du laser (relation 2.38), nous déterminons la plage de vecteurs d'onde du phonon induit. La figure 2.7 montre la dispersion du vecteur d'onde du mode A_1 TO de KNbO_3 à 192cm^{-1} pour deux longueurs d'ondes de pompes. Pour une pompe à 615nm de 10nm de largeur spectrale le vecteur d'onde induit pour le mode A_1 TO vaut 450cm^{-1} avec une largeur de raie à mi-hauteur de 3.1cm^{-1} . Pour une pompe à $1\mu\text{m}$ de 65nm de largeur spectrale le vecteur d'onde induit pour le mode A_1 TO vaut 419cm^{-1} avec une largeur de raie à mi-hauteur de 3.5cm^{-1} . Cela met en évidence l'effet de la largeur spectrale du laser de pompe sur la dispersion du vecteur d'onde autour de sa valeur centrale. Les largeurs de deux ou trois cm^{-1} trouvées sont négligeables par rapport à la valeur centrale.

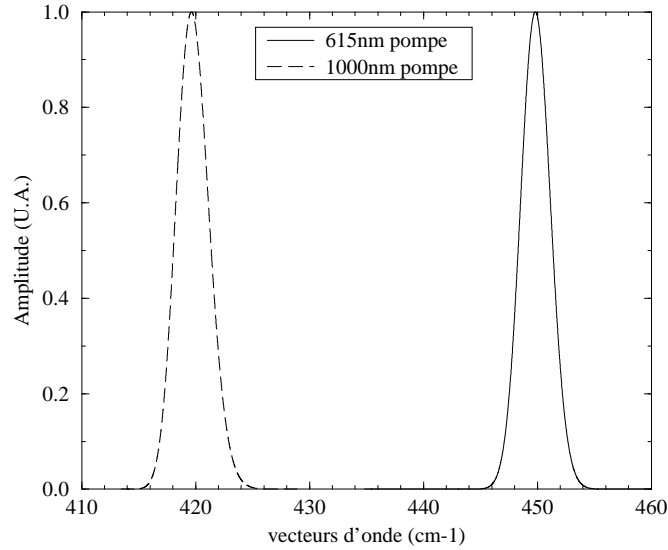


FIG. 2.7 –: *Distribution du vecteur d'onde du mode A_1 TO de fréquence 192cm^{-1} dans KNbO_3 pour $\omega_P = 615\text{nm}$ et $\omega_P = 1\mu\text{m}$*

2.2.3 Vecteur d'onde et expériences

Pour résumer l'ensemble des propriétés du vecteur d'onde des phonons, j'ai rassemblé dans la table 2.3 les différentes expériences que nous avons faites. J'ai différencié la mesure d'un coefficient symétrique de celle d'un coefficient non symétrique. J'ai précisé pour chaque type de mélange à quatre ondes les cas où la pompe et la sonde sont ou non à la même longueur d'onde. Les expériences sont expliquées au chapitre 1 et en particulier en section 1.4.1 pour les réseaux induits et en section 1.4.2 pour la porte Kerr.

expérience ↓	CARS		ISRS	
	$\omega_P = \omega_T$	$\omega_P \neq \omega_T$	$\omega_P = \omega_T$	$\omega_P \neq \omega_T$
L. Kerr Sym.	$\Delta k = 0$ $q_{ } \neq 0, q_{\perp} = 0$	$\Delta k \neq 0$ $q_{ } \neq 0, q_{\perp} = 0$	$\Delta k = 0$ $q_{ } = 0, q_{\perp} = 0$	$\Delta k = 0$ $q_{ } = 0, q_{\perp} = 0$
Réseaux Sym.	$\Delta k = 0$ $q_{ } = 0, q_{\perp} \neq 0$	$\Delta k = 0$ $q_{ } = 0, q_{\perp} \neq 0$	$\Delta k = 0$ $q_{ } = 0, q_{\perp} \neq 0$	$\Delta k = 0$ $q_{ } = 0, q_{\perp} \neq 0$
Réseaux Non Sym.	$\Delta k = 0$ $q_{ } \neq 0, q_{\perp} \neq 0$	$\Delta k = 0$ $q_{ } \neq 0, q_{\perp} \neq 0$	$\Delta k = 0$ $q_{ } \neq 0, q_{\perp} \neq 0$	$\Delta k = 0$ $q_{ } \neq 0, q_{\perp} \neq 0$
P. Kerr Non Sym.	$\Delta k = 0$ $q_{ } \neq 0, q_{\perp} = 0$	$\Delta k \neq 0$ $q_{ } \neq 0, q_{\perp} = 0$	$\Delta k = 0$ $q_{ } \neq 0, q_{\perp} = 0$	$\Delta k \neq 0$ $q_{ } \neq 0, q_{\perp} = 0$

TAB. 2.3 –: Résumé de l'accord de phase et de la valeur des vecteurs d'onde pour l'ensemble des expériences : L. Kerr = Lentille de Kerr, Réseaux = Réseaux induits et P. Kerr = Porte Kerr.

Pour chaque cas de la table 2.3, j'ai indiqué si l'accord de phase entre les quatre ondes de l'interaction (Δk) était réalisé. Je n'ai pas donné de valeurs numériques car elles changent d'un cristal à l'autre. Quand je note $\Delta k = 0$ cela veut dire que l'accord de phase est strictement réalisé ; si $\Delta k \sim 0$ il y a un désaccord de phase inférieur à 50 cm^{-1} , ce qui est une valeur faible et peut être considéré comme un quasi accord de phase. Si $\Delta k \neq 0$ le désaccord de phase est largement supérieur à 100 cm^{-1} : il n'y a pas accord de phase.

Ensuite, je précise quelle composante du vecteur d'onde du phonon q est non nulle. De la même façon, je ne donne aucun chiffre, ils sont fluctuants, mais les vecteurs d'onde sont tous compris entre 0 et 5.10^3 cm^{-1} .

J'utilise la table 2.3 pour commenter les expériences du chapitre 4. Dès à présent nous pouvons préciser quelques points marquants :

Nous avons considéré que l'accord de phase est toujours réalisé lors d'une expérience de réseau induit, car il existe toujours une configuration géométrique pour laquelle c'est vrai.

Du fait de leur géométrie, seules les expériences de réseaux induits ont une composante transverse du vecteur d'onde.

Toutes les expériences ayant des $\Delta k \neq 0$ donnent des signaux non mesurables.

Il existe une différence entre les valeurs de Δk des cas CARS et ISRS pour les expériences de *lentille de Kerr* et de *porte Kerr*. Il est alors intéressant de

considérer ces expériences pour les différencier.

2.3 Non linéarités en cascade

Les non linéarités du troisième ordre sont les premières à induire des variations de phase dans le milieu et sur les champs participant à l'interaction. Nous allons montrer dans ce chapitre qu'il est possible d'obtenir des modulations de phase avec une succession de non linéarités du second ordre. Appelés effets en cascades, ils associent l'amplitude importante de non linéarités d'ordre plus faible à des effets assimilables à des non linéarités d'ordre plus élevé. L'exemple le plus connu est la génération de troisième harmonique réalisable par du mélange à quatre ondes tel que $\omega_3 = \omega_1 + \omega_1 + \omega_1$ avec un $\chi^{(3)}$ faible, mais beaucoup plus efficace en utilisant à la suite deux effets du second ordre ($\chi^{(2)}$) tels que $\omega_2 = \omega_1 + \omega_1$ suivis de $\omega_3 = \omega_2 + \omega_1$.

Ce chapitre présente le fondement théorique de la cascade de $\chi^{(2)}$ ainsi que le principe du code de calcul qui nous a permis d'expliquer les expériences du chapitre 4.4.

2.3.1 Calcul de $\chi^{(2)}$ en cascade

Les non linéarités du second ordre ($\chi^{(2)}$) correspondent à une interaction de trois ondes dans un milieu non linéaire non centrosymétrique. Les équations de propagation couplées 2.46, 2.47 et 2.48 permettent d'obtenir les variations de phases induites sur les trois champs de l'interaction par des effets en cascade de sommes et différences de fréquences. Nous y avons aussi ajouté la contribution de la polarisation d'ordre 3 [54] :

$$\left(\frac{\delta}{\delta z} + \frac{1}{V_{g1}} \frac{\delta}{\delta t} \right) \Psi_1 + \frac{i}{2a_{g1}} \frac{\delta^2 \Psi_1}{\delta t^2} = iP_1^{(2)} + iP_1^{(3)} \quad (2.46)$$

$$\left(\frac{\delta}{\delta z} + \frac{1}{V_{g2}} \frac{\delta}{\delta t} \right) \Psi_2 + \frac{i}{2a_{g2}} \frac{\delta^2 \Psi_2}{\delta t^2} = iP_2^{(2)} + iP_2^{(3)} \quad (2.47)$$

$$\left(\frac{\delta}{\delta z} + \frac{1}{V_{g3}} \frac{\delta}{\delta t} \right) \Psi_3 + \frac{i}{2a_{g3}} \frac{\delta^2 \Psi_3}{\delta t^2} = iP_3^{(2)} + iP_3^{(3)} \quad (2.48)$$

La direction de propagation des trois ondes est notée z . Les champs initiaux sont Ψ_1 et Ψ_2 . Lors des expériences et pour notre code de propagation, Ψ_1 correspond au champ de pompe ; c'est le champ ayant la plus forte intensité. Le champ Ψ_2 correspond au champ de sonde ; son intensité est généralement 10 à 100 fois plus faible que l'intensité de pompe. Ψ_3 est le champ somme avec $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$. Les termes V_{gi} et a_{gi} représentent les vitesses de groupe et leurs dispersions pour les champs Ψ_i .

Les termes de polarisation d'ordre 2 faisant intervenir la somme de fréquences s'écrivent :

$$P_1^{(2)} = \frac{\omega_1}{n_{1,c}} d_{eff} \Psi_2^* \Psi_3 . e^{i\Delta k_\Sigma z} \quad (2.49)$$

$$P_2^{(2)} = \frac{\omega_2}{n_{2,c}} d_{eff} \Psi_1^* \Psi_3 . e^{i\Delta k_\Sigma z} \quad (2.50)$$

$$P_3^{(2)} = \frac{\omega_3}{n_{3,c}} d_{eff} \Psi_1 \Psi_2 . e^{-i\Delta k_\Sigma z} \quad (2.51)$$

avec les termes d'accord de phase pour la somme de ω_1 avec ω_2 et pour le doublage de ω_1 et ω_2 :

$$\Delta k_\Sigma = \frac{2\pi}{c} (n_1 \omega_1 + n_2 \omega_2 - n_3 \omega_3) \quad (2.52)$$

Si nous voulons considérer dans notre code de calcul la différence des fréquences ω_1 et ω_2 , il faut réécrire les termes de polarisation d'ordre 2 :

$$P_1^{(2)} = \frac{\omega_1}{n_{1,c}} d_{eff} \Psi_2 \Psi_3 . e^{i\Delta k_- z} \quad (2.53)$$

$$P_2^{(2)} = \frac{\omega_2}{n_{2,c}} d_{eff} \Psi_1 \Psi_3 . e^{i\Delta k_- z} \quad (2.54)$$

$$P_3^{(2)} = \frac{\omega_3}{n_{3,c}} d_{eff} \Psi_1 \Psi_2^* . e^{-i\Delta k_- z} \quad (2.55)$$

avec Δk_- qui remplace Δk_Σ :

$$\Delta k_- = \frac{2\pi}{c} (n_1 \omega_1 - n_2 \omega_2 - n_3 \omega_3) \quad (2.56)$$

Généralement, dans les codes de calcul de différence ou de somme de fréquences, les termes $P_1^{(2)}$ et $P_2^{(2)}$ sont négligés, seul reste le terme $P_3^{(2)}$. Cette approximation revient à considérer qu'il n'y a pas de variation d'énergie notable des ondes fondamentales. Les trois équations 2.46, 2.47 et 2.48 ne sont plus couplées et toute interaction de l'onde harmonique avec les ondes fondamentales est négligée. Il reste à calculer la propagation sur z dépendante du temps, de l'équation 2.48.

Dans notre calcul, nous considérons les termes $P_1^{(2)}$ et $P_2^{(2)}$ car ils correspondent à une recombinaison de l'onde ω_3 vers ω_1 et ω_2 et c'est cette succession de la somme de fréquences et de la recombinaison vers les ondes fondamentales qui est une cascade de $\chi^{(2)}$. Notre code de calcul, réalisé en FORTRAN 77, calcule donc la propagation en z et en temps des équations couplées 2.46, 2.47 et 2.48. Pour faire le calcul, le code procède par proximité : il calcule pour une position z_n donnée l'ensemble de l'évolution temporelle à partir de l'évolution temporelle à une position z_{n-1} . Cette technique est connue sous le nom de méthode aux différences finies. La seconde astuce de calcul consiste à se placer dans un repère temporel mobile fixé sur le champ Ψ_1 en tenant compte de sa vitesse de groupe V_{g1} pour calculer en toute position z_n le temps d'origine.

Les termes de polarisation d'ordre 3 des équations 2.46, 2.47 et 2.48 sont:

$$P_1^{(3)} = \frac{\omega_1}{n_1 \cdot c} n_{2eff} (\Psi_1^* \Psi_1 + 2\Psi_2^* \Psi_2 + \frac{2}{3}\Psi_3^* \Psi_3) \Psi_1 \quad (2.57)$$

$$P_2^{(3)} = \frac{\omega_2}{n_2 \cdot c} n_{2eff} (2\Psi_1^* \Psi_1 + \Psi_2^* \Psi_2 + \frac{2}{3}\Psi_3^* \Psi_3) \Psi_2 \quad (2.58)$$

$$P_3^{(3)} = \frac{\omega_3}{n_3 \cdot c} n_{2eff} (\frac{2}{3}\Psi_1^* \Psi_1 + \frac{2}{3}\Psi_2^* \Psi_2 + \Psi_3^* \Psi_3) \Psi_3 \quad (2.59)$$

Nous sommes obligés de tenir compte de ces termes car ils produisent un effet sur la phase des ondes, du même ordre de grandeur que les termes d'ordre 2.

Chaque polarisation $P^{(3)}$ comprend un terme d'auto-modulation de phase et deux termes de modulation de phase croisée. Les termes croisés $(\Psi_2 \Psi_2^* \Psi_1)$ sont deux fois plus intenses que les termes d'auto-modulation $(\Psi_1 \Psi_1^* \Psi_1)$.

Lors du doublage de type I la polarisation du faisceau harmonique est orthogonale à celle du fondamental. Les termes non diagonaux (par exemple : $\Psi_3 \Psi_3^* \Psi_1$) sont trois fois plus faibles si l'on considère des effets électroniques dans des milieux isotropes ; c'est la condition de Kleinman [55]. Ce n'est pas exactement le cas mais c'est une bonne approximation ; de plus il est difficile de trouver des coefficients mesurés précisément pour les non linéarités électroniques des cristaux en régime femtoseconde.

Les effets en cascade entraînent des variations de phase sur les champs fondamentaux [56]. Ils sont pris en compte dans le calcul par les termes de recombinaison des $P^{(2)}$ des champs fondamentaux Ψ_1 et Ψ_2 . C'est ainsi que le terme $P_1^{(2)}$ de recombinaison de ω_3 vers ω_1 peut être assimilé à un terme de polarisation d'ordre 3, si l'on considère que Ψ_3 provient de $P_3^{(2)}$. L'effet sur le fondamental est une variation de phase comme $P^{(3)}$. Ce terme de recombinaison est aussi la cause d'une variation d'amplitude que nous ne commenterons pas.

A la différence d'une non linéarité du troisième ordre le déphasage est plus important (voir la section 4.4.1.4). De plus la condition de conservation de l'énergie interdit ici une modulation de phase croisée à deux longueurs d'ondes.

2.3.1.1 Accord de phase

Le terme d'accord de phase étant important pour nos expériences et pour le calcul de la cascade, nous calculons l'angle θ d'incidence sur le cristal correspondant à l'accord de phase parfait.

Nous nous plaçons dans le cas d'un cristal uniaxe négatif pour un mélange de fréquences de type I, pour utiliser, par exemple, le cristal de β -BBO . L'accord

de phase pour la somme de fréquences se déduit de l'équation 3.16 de la section 3.2.4.1 issue du chapitre 3 sur l'amplification paramétrique. Nous obtenons avec ω_1 et ω_2 les fréquences à sommer et ω_3 la fréquence somme :

$$\sin^2(\theta) = \frac{\left(\frac{n_o(\omega_1) \cdot \omega_1 + n_o(\omega_2) \cdot \omega_2}{\omega_3}\right)^{-2} - n_o^{-2}(\omega_3)}{n_e^{-2}(\omega_3) - n_o^{-2}(\omega_3)} \quad (2.60)$$

La figure 2.8 donne l'angle d'accord de phase pour la somme du faisceau à 615nm avec le faisceau infrarouge issu de l'amplificateur paramétrique.

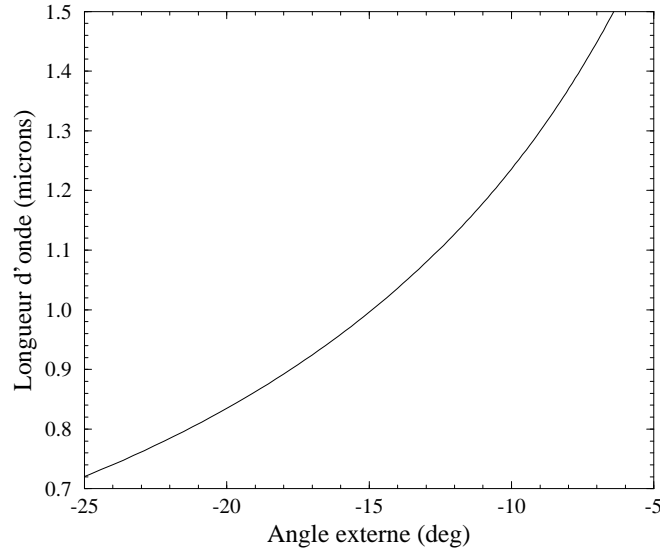


FIG. 2.8 –: Accord de phase pour la somme de fréquences entre le 615nm et l'infrarouge dans β -BBO

L'accord de phase pour la différence de fréquences est celui de l'amplification paramétrique ; il est présenté à la section 3.2.4.1 page 62.

2.3.2 Résumé

Nous venons de mettre en équations des effets en cascades liés à la combinaisons de $\chi^{(2)}$ ou de $\chi^{(2)}$ et $\chi^{(3)}$ lors d'interactions à trois ondes comme le doublage, la somme ou la différence de fréquences. Ces cascades entraînent des variations de phase comparables à un n_2 lié au $\chi^{(3)}$ des cristaux.

Nous avons mis en évidence l'importance de l'accord de phase et de la vitesse de groupe dans ces équations.

J'ai intégré ces équations dans un code permettant de les comparer avec les résultats expérimentaux obtenus. Les limites de ce code sont liées aux imprécisions sur les valeurs numériques des non linéarités, en particulier des n_2 effectifs et des non linéarités d'ordre 4.

Chapitre 3

L'amplificateur paramétrique optique

3.1 Introduction

Nous disposons d'une source laser femtoseconde à $615nm$ et nous souhaitons travailler dans l'infrarouge proche avec une bonne accordabilité en longueur d'onde. Un choix technologique est donc à faire pour monter un système répondant à nos besoins.

L'utilisation d'un laser titane saphir femtoseconde est à exclure car il est accordable au mieux sur une centaine de nanomètres.

La source infrarouge accordable peut être obtenue à partir d'un continuum ou par génération paramétrique. Nous avons choisi une source infrarouge par sélection de longueurs d'onde dans un continuum, car le continuum permet d'obtenir une impulsion amplifiée plus courte que la durée du laser fondamental. Cette source est amplifiée pour atteindre les quelques microjoules d'énergie souhaités.

Plusieurs types d'amplifications sont possibles. Un système d'amplification par passage dans des cuves de colorants a été essayé sans grand succès du fait du faible gain des colorants dans l'infrarouge. L'amplification multi passages dans un cristal de $Ti : Sa$ et l'amplification paramétrique ont de meilleures performances. Le système paramétrique s'est imposé car il permet un accord en longueur d'onde rapide sur une plus large bande spectrale.

Les exemples d'amplificateurs paramétriques optiques sont peu nombreux dans le domaine femtoseconde [57-59] Mais ils nous permettent de comparer notre système à d'autres. La source réalisée délivre des impulsions de $80fs$ à $10Hz$ d'une énergie de quelques microjoules. La plage d'accord en longueur d'onde s'étend de $780nm$ à $960nm$ avec des spectres de $15nm$ à $65nm$ de large.

L'amplificateur paramétrique optique est une application de la différence de fréquence, phénomène d'optique non linéaire du second ordre. Nous présenterons dans un premier temps les principes généraux présidant à son fonctionnement avant de décrire sa réalisation.

3.2 Non linéarités optiques du deuxième ordre

Il ne s'agit pas ici de présenter l'optique non linéaire en prenant le second ordre comme exemple, mais, plutôt de rappeler les notions qui ont servi à la conception et à la réalisation de l'amplificateur paramétrique. Ainsi après une présentation rapide des non linéarités du second ordre, sont abordés le choix du cristal et les calculs des différents paramètres de l'amplificateur paramétrique optique.

3.2.1 Polarisation non linéaire d'ordre 2

La susceptibilité non linéaire du second ordre $\chi^{(2)}$ est un tenseur de rang 3. Ses éléments s'écrivent $\chi_{ijk}^{(2)}$. En utilisant la convention de Shen [40], au facteur ε_0 près, les composantes du vecteur polarisation s'écrivent :

$$P_i^{(2)}(\omega_3) = \varepsilon_0 \sum_{j,k} \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2) \Psi_j(\omega_1) \Psi_k(\omega_2) \quad (3.1)$$

où $\Psi(\omega)$ sont les amplitudes de Fourier des composantes $\Psi(t)$ du champ électrique; elles sont données par l'expression :

$$\begin{aligned} \Psi(\omega) &= \frac{1}{2} [\bar{\Psi}(\omega) e^{i\omega t} + \bar{\Psi}(-\omega) e^{-i\omega t}] \\ \Psi(\omega) &= \Re[\bar{\Psi}(\omega) e^{i\omega t}] \end{aligned} \quad (3.2)$$

De la même façon, la polarisation $P_i^{(2)}(\omega_3)$ est définie par :

$$\begin{aligned} P_i^{(2)}(\omega_3) &= \frac{1}{2} [\bar{P}_i^{(2)}(\omega_3) e^{i\omega_3 t} + c.c.] \\ &= \Re[\bar{P}_i^{(2)}(\omega_3) e^{i\omega_3 t}] \end{aligned} \quad (3.3)$$

Dans la relation 3.1, $\chi^{(2)}$ est lié à la structure du milieu non linéaire. Pour avoir $\chi^{(2)}$ non nul il faut un milieu qui ne possède pas de centre d'inversion¹.

Pour mettre en évidence les différents effets liés à la création d'une polarisation du second ordre, nous réécrivons l'équation 3.1 en plaçant $\chi^{(2)}$ en facteur² :

$$P_i^{(2)}(\omega, t) = \varepsilon_0 \chi^{(2)} \sum_{mn} \Psi(\omega_m, t) \Psi(\omega_n, t) \quad (3.4)$$

1. La symétrie d'inversion est une propriété de symétrie vérifiée par les milieux isotropes, liquides, gaz, solides amorphes, et par les cristaux "centrosymétriques" appartenant aux classes cristallines 11 et 32.

2. Cette factorisation n'est pas physiquement juste car $\chi^{(2)}$ est un tenseur. Cette factorisation serait possible pour des cristaux centrosymétrique mais ils ont un $\chi^{(2)}$ nul.

et

$$P_i^{(2)}(\omega_3, t) = \varepsilon_0 \chi_{\omega_3}^{(2)} \{ \Psi_i^2(\omega_1, t) + 2\Psi(\omega_1, t)\Psi(\omega_2, t) + \Psi_i^2(\omega_2, t) \} \quad (3.5)$$

$$P_i^{(2)}(\omega_3, t) = \varepsilon_0 \chi_{\omega_3}^{(2)} \left\{ \begin{array}{l} \overline{\Psi}_i^2(\omega_1) e^{-i2\omega_1 t} + \overline{\Psi}_i^2(\omega_2) e^{-i2\omega_2 t} + c.c. \\ + 2\overline{\Psi}_i^2(\omega_1) e^{-i(\omega_1 - \omega_1)t} + 2\overline{\Psi}_i^2(\omega_2) e^{-i(\omega_2 - \omega_2)t} \\ + 2\overline{\Psi}_i(\omega_1) \overline{\Psi}_i(\omega_2) e^{-i(\omega_1 + \omega_2)t} + c.c. \\ + 2\overline{\Psi}_i(\omega_1) \overline{\Psi}_i^*(\omega_2) e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t} + c.c. \end{array} \right\} \quad (3.6)$$

La décomposition 3.6 fait apparaître les quatre processus non linéaires du second ordre. La première ligne montre la génération des secondes harmoniques³ des champs ω_1 et ω_2 . La seconde correspond aux termes de rectification optique⁴ C'est un cas dégénéré de différence de fréquences. Les troisième et quatrième lignes correspondent aux sommes et différences des fréquences ω_1 et ω_2 .

L'émission paramétrique est une application de la différence de fréquences. En mélangeant le champ pompe ω_1 avec le champ signal ω_2 le cristal génère un champ complémentaire ω_3 à la fréquence correspondant à la différence des deux premières; c'est le champ complémentaire ou *Idler*.

D'une façon générale, il est plus facile d'utiliser une forme contractée du tenseur $\chi_{ijk}^{(2)}$. Pour des raisons de symétrie, de nombreux termes du tenseur sont égaux et donc interchangeables. Un regroupement des termes permet d'écrire[61] :

$$d_{ij} = d_{ijk} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)} \quad (3.7)$$

avec :

$$\begin{array}{ll} jk & \rightarrow j \\ 11 & \rightarrow 1 \\ 22 & \rightarrow 2 \\ 33 & \rightarrow 3 \\ 23, 32 & \rightarrow 4 \\ 31, 13 & \rightarrow 5 \\ 12, 21 & \rightarrow 6 \end{array} \quad (3.8)$$

3. La génération de seconde harmonique est utilisée pour le doublage des lasers pour obtenir des sources à des longueurs d'onde plus courtes correspondant aux bandes d'absorption de nombreux matériaux. Elle est aussi utilisée dans les auto-corrélateurs pour caractériser les lasers femtosecondes

4. La rectification optique permet de générer des impulsions dans l'infrarouge avec des impulsions femtosecondes. La largeur spectrale de ces impulsions permet d'atteindre des longueurs d'onde de quelques micromètres [60].

Ce qui donne la polarisation :

$$\begin{bmatrix} P_{x.3} \\ P_{y.3} \\ P_{z.3} \end{bmatrix} = 4\varepsilon_0 \cdot \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & \cdots & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & \cdots & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & \cdots & d_{36} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \Psi_{x.1} \cdot \Psi_{x.2}^* \\ \Psi_{y.1} \cdot \Psi_{y.2}^* \\ \Psi_{z.1} \cdot \Psi_{z.2}^* \\ \Psi_{y.1} \cdot \Psi_{z.2}^* + \Psi_{z.1} \cdot \Psi_{y.2}^* \\ \Psi_{z.1} \cdot \Psi_{x.2}^* + \Psi_{x.1} \cdot \Psi_{z.2}^* \\ \Psi_{x.1} \cdot \Psi_{y.2}^* + \Psi_{y.1} \cdot \Psi_{x.2}^* \end{bmatrix} \quad (3.9)$$

avec :

$$P_{i.3} = P_i(\omega_3), \Psi_{i.1} = \Psi_i(\omega_1), \Psi_{i.2} = \Psi_i(\omega_2)$$

Pour comparer l'efficacité relative des différents processus non linéaires d'ordre 2, on fait appel à des coefficients de susceptibilités non linéaires effectifs, d_{eff} [62]. Leur calcul dans le cas de l'amplification paramétrique est abordé dans la section 3.2.4.3.

3.2.2 Cristaux pour l'amplification paramétrique

De nombreux cristaux sont utilisés pour l'amplification paramétrique⁵. Nous avons choisi le β -BBO pour son efficacité et sa disponibilité sur le marché. Ce cristal n'étant pas centrosymétrique, il a des propriétés non linéaires d'ordre 2, dont un coefficient effectif $d_{eff} \sim 2.3pm/V = d_{22}$ qui donne une bonne efficacité à l'amplification paramétrique[57] ainsi qu'au doublage de fréquence.

Le $\beta - BaB_2O_4$, ou Bêta-Borate de Baryum a été découvert dans les années 1980 par un groupe chinois[63]. Il appartient au groupe cristallin 3m et est transparent pour des longueurs d'onde comprises entre $0.198\mu m$ et $2.6\mu m$ [64, 62].

3.2.3 Equations de Sellmeier du β -BBO

Pour optimiser la propagation des trois champs impliqués dans l'émission paramétrique, il faut connaître les indices optiques pour chacun des axes du β -BBO.

La dispersion des indices ordinaire et extraordinaire en fonction de la longueur d'onde est donnée par des équations, dites de Sellmeier, approchant la dispersion hors résonance.

5. Pour l'amplification paramétrique les cristaux utilisés sont certains borates, le β -BBO et le LBO mais aussi des oxydes comme le KTP ou le $KNbO_3$.

Pour le β -BBO, les équations 3.10 donnent les courbes de dispersion de la figure 3.1.

$$\begin{aligned} n_o^2 &= 2.7405 + \frac{0.0184}{\lambda^2 - 0.0179} - 0.0155\lambda^2 \\ n_e^2 &= 2.3730 + \frac{0.0128}{\lambda^2 - 0.0156} - 0.0044\lambda^2 \end{aligned} \quad (3.10)$$

avec λ en μm .

Ce modèle est basé sur l'existence de bande d'absorption dans l'ultra violet proche et a été ajusté à partir de mesures spectrales de l'indice[62].

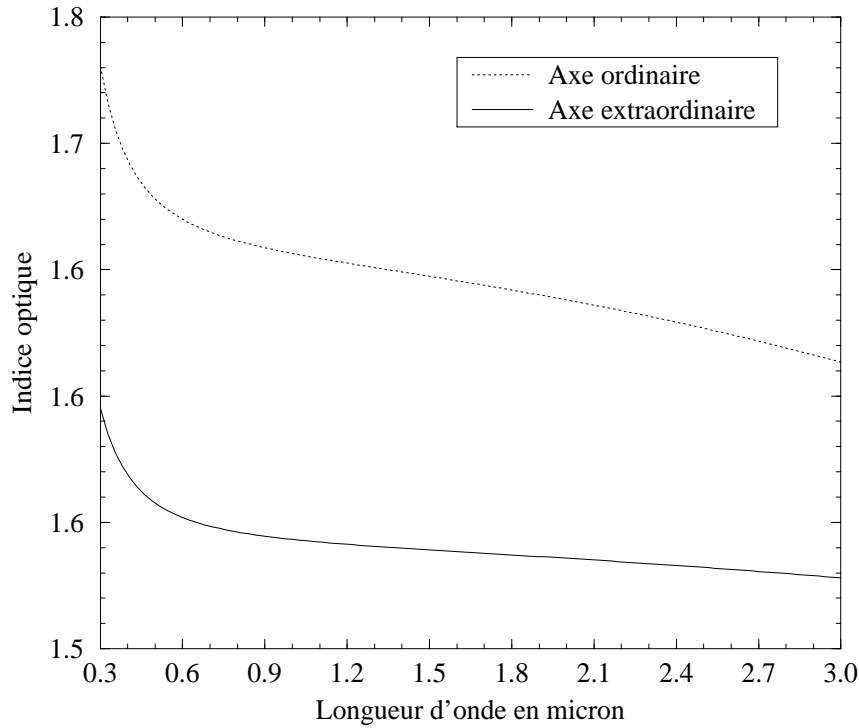


FIG. 3.1 –: *Dispersion chromatique des indices dans β -BBO*

3.2.4 Génération et amplification paramétrique

La génération paramétrique, vue en section 3.2.1, ne permet pas d'expliquer l'amplification paramétrique. Le processus d'amplification est possible par différence de fréquence quand l'émission paramétrique est stimulée par une amorce

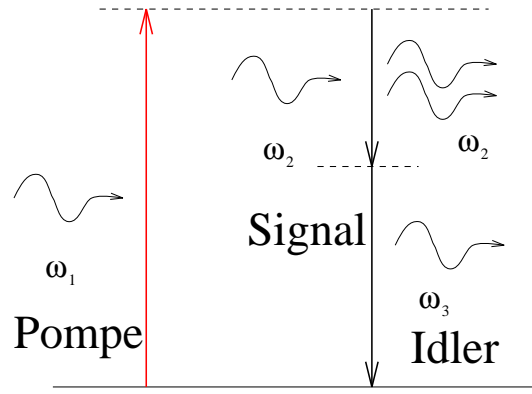


FIG. 3.2 –: Schéma énergétique de l'émission stimulée paramétrique

du champ signal, comme montré sur la figure 3.2. L'émission stimulée conservant les propriétés de cohérence du champ incident, nous sommes bien dans une configuration d'amplificateur laser.

Le continuum, généré pour ensemençer l'amplification paramétrique, comprend les longueurs d'onde signal et complémentaire. Elles sont donc susceptibles d'être amplifiées de la même façon. Le continuum présentant un décalage temporelle de fréquence (chirp) important, les retards optiques entre la branche signal et les branches de pompe de l'amplificateur paramétrique sont ajustés pour amplifier l'une ou l'autre des deux longueur d'onde.

3.2.4.1 Accord de phase

Pour que trois ondes interagissent efficacement il faut que les vecteurs d'onde des trois champs satisfassent à la condition d'accord de phase :

$$\vec{k}_{Pompe} = \vec{k}_{Signal} + \vec{k}_{Idler} \quad (3.11)$$

Et dans le cas colinéaire :

$$k_{Pompe} \cdot \vec{u} = (k_{Signal} + k_{Idler}) \vec{u} \quad (3.12)$$

avec : $k = \frac{n \cdot \omega}{c}$ où c est la vitesse de la lumière, n l'indice que voit l'onde, ω la pulsation de l'onde et \vec{u} la direction commune des trois vecteurs d'onde.

Il existe deux types d'accord de phase colinéaires; ils se distinguent par les polarisations de chacun de leurs trois champs. Lorsque la polarisation de la pompe est orthogonale à celle du signal et du complémentaire il s'agit d'un effet paramétrique de type I. Le type II est obtenu lorsque les polarisations des champs signal et complémentaire sont croisées.

Pour notre amplificateur paramétrique, nous avons choisi un accord de phase de type I; il permet de mieux séparer le signal de la pompe. Le complémentaire a la même polarisation que le signal mais il est absorbé par le β -BBO qui n'est plus transparent après $2.6\mu m$ [62]. De plus, l'amplification paramétrique non colinéaire et la différence de divergence entre les deux longueurs d'onde permettent de séparer les deux impulsions à la sortie de l'amplificateur.

Le β -BBO est un cristal uniaxe négatif. Son indice ordinaire est supérieur à l'extraordinaire; $n_o > n_e$. Pour obtenir l'accord de phase de type I, la polarisation ordinaire est choisie pour le signal et son complémentaire. La pompe est polarisée orthogonalement sur l'indice extraordinaire. Cet indice est fonction de l'angle θ entre l'axe z et celui de propagation du faisceau. Par contre il est indépendant de l'angle ϕ d'orientation dans le plan (x,y) d'indice ordinaire 3.5. L'accord de phase colinéaire de type I peut alors s'écrire :

$$n_e(\theta, \omega_P) \cdot \omega_P = n_o(\omega_S) \cdot \omega_S + n_o(\omega_I) \cdot \omega_I \quad (3.13)$$

avec l'ellipsoïde des indices pour le champ pompe :

$$\frac{1}{n_e^2(\theta, \omega_P)} = \frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2(\omega_P)} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_e^2(\omega_P)} \quad (3.14)$$

En choisissant une longueur d'onde de pompe et de signal, l'angle d'accord de phase se déduit de 3.14 par la relation suivante :

$$\sin^2(\theta) = \frac{n_e^{-2}(\theta, \omega_P) - n_o^{-2}(\omega_P)}{n_e^{-2}(\omega_P) - n_o^{-2}(\omega_P)} \quad (3.15)$$

En remplaçant dans la relation 3.15 $n_e(\theta, \omega_P)$ par l'équation 3.13, nous calculons l'angle θ d'accord de phase en fonction de différentes fréquences du signal pour une même fréquence de pompe :

$$\sin^2(\theta) = \frac{\left(\frac{n_o(\omega_S) \cdot \omega_S + n_o(\omega_I) \cdot \omega_I}{\omega_P} \right)^{-2} - n_o^{-2}(\omega_P)}{n_e^{-2}(\omega_P) - n_o^{-2}(\omega_P)} \quad (3.16)$$

La figure 3.3 illustre la relation 3.16 pour un laser de pompe à $615nm$.

La figure 3.4 donne les courbes d'accord de phase calculées pour différentes longueurs d'onde du champ de pompe. La différence de forme entre les courbes dans le visible et celles dans le proche infrarouge est liée à la dispersion d'indice de β -BBO. La biréfringence étant plus faible pour les grandes longueurs d'onde, l'angle d'accord de phase diminue pour des pompes vers l'infrarouge.

Nous remarquons aussi que la courbe d'accord de phase à $600nm$ possède 2 points d'inflexion, le premier à $1200nm$ correspond à la dégénérescence⁶, le second

6. A la dégénérescence les champs Signal et Idler sont à $1200nm$ soit le double de la longueur d'onde de pompe.

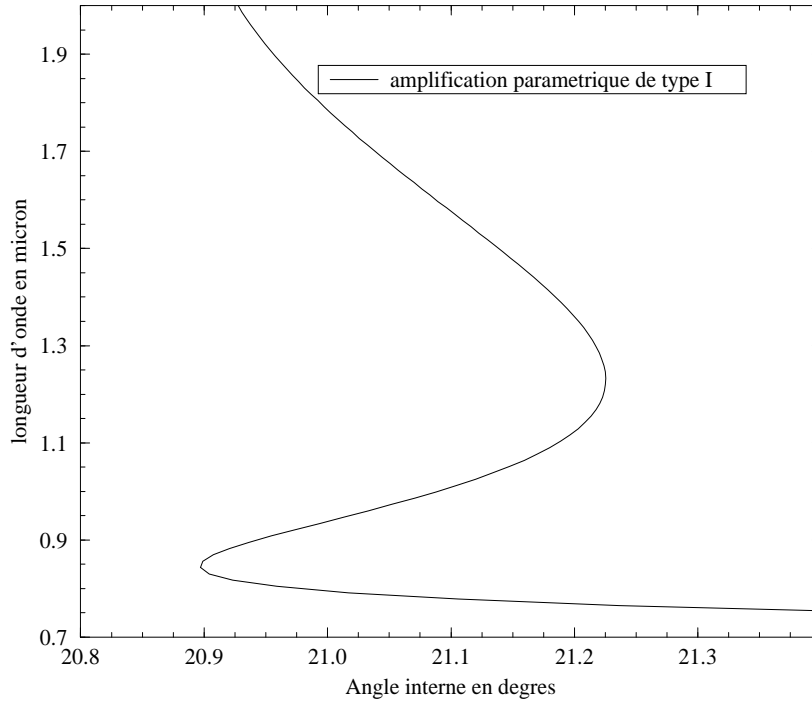


FIG. 3.3 —: *Angle interne d'accord de phase pour l'amplificateur paramétrique optique pompé à 615nm*

à 780nm est responsable de la limitation inférieure de notre plage d'accord de phase.

Cette figure illustre aussi la large plage d'application du cristal de β -BBO pour l'amplification paramétrique. En effet, il est possible d'obtenir l'ensemble des longueurs d'onde du visible avec des pompes dans l'UV proche et l'infrarouge avec des pompes dans l'infrarouge proche.

3.2.4.2 Accordabilité

La plage d'accordabilité en longueurs d'onde d'un amplificateur paramétrique de type I dans un cristal de β -BBO avec une pompe à 615nm s'étend de 750nm à 3.1 μ m. Nous souhaitons travailler dans l'infrarouge proche de 750nm à 1 μ m. Cette gamme est suffisante pour nos expériences. De plus, les longueurs d'onde au-dessus du micromètre ne sont plus détectables avec des photo-détecteurs au silicium.

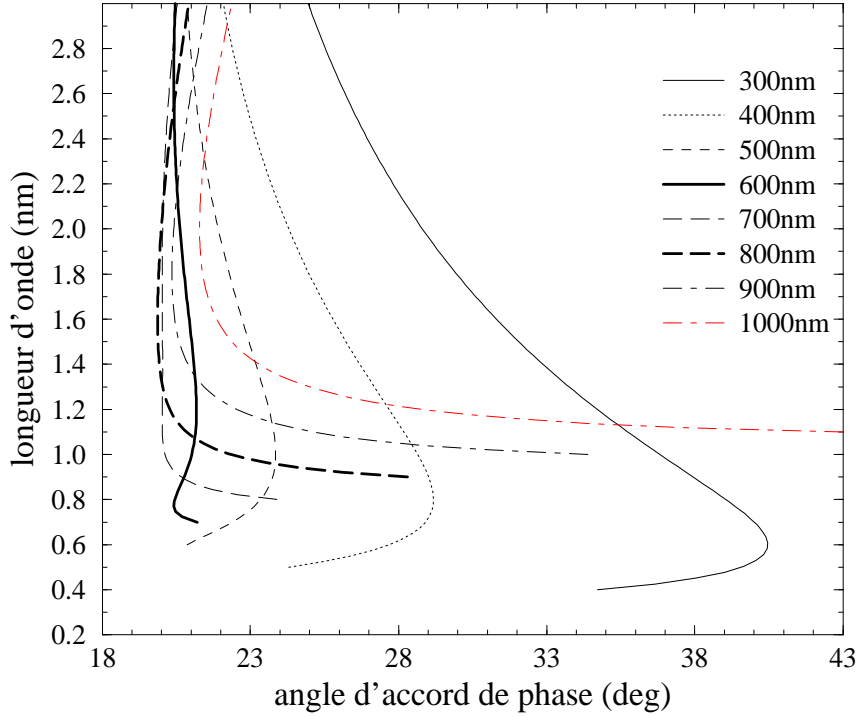


FIG. 3.4 –: Angle interne d'accord de phase pour l'amplificateur paramétrique optique à différentes longueurs d'onde de pompe

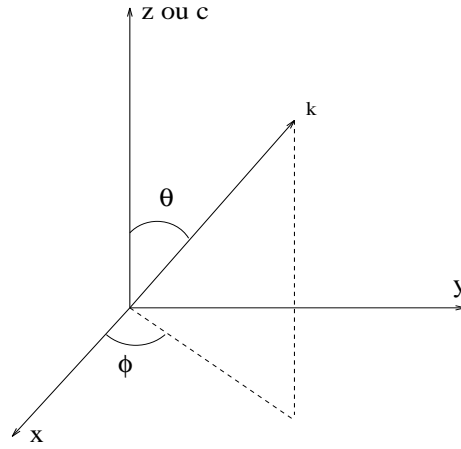
Il est difficile d'accorder de façon continue l'amplificateur paramétrique sur toute sa plage d'accord. L'accord de phase colinéaire permet d'atteindre une plage réduite de longueurs d'onde ($780 \leftrightarrow 880nm$). Ensuite c'est la différence de vitesse de groupe qui limite le gain. Pour décaler cette plage il faut avoir recours à l'amplification avec accord de phase non colinéaire (voir la section 3.2.4.8).

3.2.4.3 Coefficients effectifs

L'accord de phase colinéaire est lié à l'angle θ entre l'axe optique⁷ et la direction de propagation des ondes. Pour définir dans l'espace, par rapport aux trois axes du trièdre direct, une direction de propagation il suffit de deux angles : θ et ϕ (figure : 3.5).

L'angle ϕ est choisi pour avoir le maximum d'efficacité non linéaire; pour cela il faut optimiser le coefficient effectif d_{eff} d'ordre 2. Celui-ci est fonction des

7. L'axe c ou z pour un cristal uniaxe.

FIG. 3.5 –: *Trièdre direct*

propriétés géométriques du cristal, et est donné [62, 65] suivant le type par :

$$\text{Type I: } d_{oe}^{eff} = d_{31} \sin \theta - d_{22} \sin 3\phi \cos \theta \quad (3.17)$$

$$\text{Type II: } d_{eff}^{oe} = d_{oe}^{eff} = d_{22} \cos 3\phi \cos^2 \theta \quad (3.18)$$

avec $d_{22} = 2.3 \text{ pm/V}$ et $d_{31} = 0.16 \text{ pm/V}$. En choisissant $\phi = 0 \text{ deg}$ pour l'amplification paramétrique de type I et $\phi = 30 \text{ deg}$ ou $\phi = 90 \text{ deg}$ pour le type II, le coefficient effectif est maximum.

La courbe d'accord de phase 3.3 montre un angle θ voisin de 21 degrés pour l'amplification paramétrique de type I avec une pompe à 620 nm . Le cristal de β -BBO regroupant les meilleures caractéristiques pour notre application sera donc taillé à $\theta = 21 \text{ deg}$ et $\phi = 0 \text{ deg}$.

3.2.4.4 Double réfraction ou walk off

Dans un cristal biréfringent, le champ électrique $\vec{\Psi}$ et le vecteur de déplacement \vec{D} n'ont pas forcément la même direction car $\vec{D} = \varepsilon_i \vec{\Psi}_i$. Alors que \vec{D} est perpendiculaire au plan d'onde, $\vec{\Psi}$ est perpendiculaire au vecteur de Poynting⁸ \vec{S} . La double réfraction est l'angle entre les vecteurs de Poynting des ondes pompe, signal et complémentaire de l'amplification paramétrique.

Les ondes ordinaires, les ondes polarisées selon les axes optiques ou dans le plan (x,y) d'un cristal uniaxe comme β -BBO ont un vecteur de Poynting parallèle à la normale au front d'onde et donc à \vec{k} . Par contre la pompe est polarisée dans le plan (x,z) : elle est donc soumise à la double réfraction.

8. Le vecteur de Poynting donne la direction de propagation de l'énergie.

Pour l'amplification paramétrique de type I la double réfraction à considérer est donc celle de la pompe. Sachant que \vec{D}_P est orthogonal à \vec{k}_P dans le plan (x,z) nous pouvons écrire⁹ pour les coordonnées du vecteur \vec{D}_P et du champ $\vec{\Psi}_P$:

$$\vec{D}_P \left\{ \begin{array}{l} \cos\theta.\vec{u}_x \\ -\sin\theta.\vec{u}_z \end{array} \right\} \quad (3.19)$$

et,

$$\vec{\Psi}_P \left\{ \begin{array}{l} \cos(\theta + \alpha).\vec{u}_x \\ -\sin(\theta + \alpha).\vec{u}_z \end{array} \right\} \quad (3.20)$$

avec α l'angle de double réfraction et θ l'angle d'accord de phase (figure 3.6). Il faut remarquer que α est l'angle entre \vec{S} et \vec{k} mais aussi celui entre \vec{E} et \vec{D} . $\vec{D}_P = \epsilon\vec{\Psi}_P$; nous avons donc :

$$\vec{D}_P \left\{ \begin{array}{l} n_o^2\Psi_x.\vec{u}_x \\ n_e^2\Psi_z.\vec{u}_z \end{array} \right\} \quad (3.21)$$

En remplaçant \vec{D}_P et $\vec{\Psi}_P$ dans la relation 3.21 par leur expressions 3.19 et 3.20 nous obtenons l'angle α de double réfraction avec la relation :

$$\tan(\theta + \alpha) = \frac{n_o^2}{n_e^2} \tan(\theta) \quad (3.22)$$

Pour un angle θ d'environ 21 degrés l'angle de double réfraction est de 3 degrés. Ce qui équivaut à un écart latéral de 0.26mm après une propagation dans 5mm de cristal de β -BBO. Ce décalage est visible à l'œil nu.

3.2.4.5 Longueur quasistatique paramétrique

Les impulsions courtes ont un spectre large. Dans les milieux anisotropes, on observe une différence de vitesse de groupe entre des impulsions polarisées orthogonalement. Il existe donc une distance finie dans le cristal de β -BBO pendant laquelle les impulsions se recouvrent, c'est la longueur quasistatique¹⁰.

Les équations de Sellmeier nous donnent la dispersion chromatique d'indice pour le cristal de β -BBO. A cette dispersion est associée celle du vecteur d'onde

9. Ce calcul du walk off pour le type I m'a été suggéré par F. Hache du laboratoire d'Optique Quantique lors d'une conversation.

10. Cette grandeur est parfois appelée longueur de cohérence [66] par abus de langage, la longueur de cohérence paramétrique est fonction du gain et de l'écart à l'accord de phase paramétrique[65].

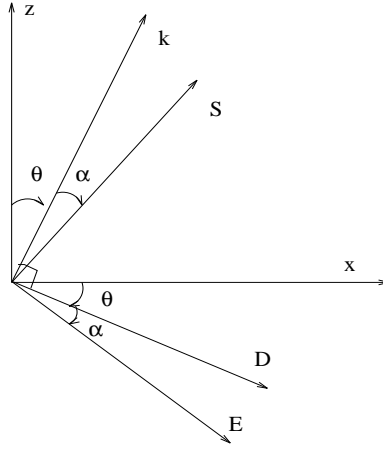


FIG. 3.6 –: Angles entre le vecteur d'onde, le champ et le vecteur de Poynting

\vec{k} . Il est possible de considérer le développement limité de \vec{k} autour d'une fréquence centrale ω_0 :

$$k = \frac{\omega}{c}n(\omega) \simeq k_0 \left(1 + \left[\frac{dk}{d\omega} \right]_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \left[\frac{d^2k}{d\omega^2} \right]_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \dots \right) \quad (3.23)$$

La vitesse de groupe d'une impulsion est donnée par :

$$V_g = \frac{1}{(dk/d\omega)_{\omega_0}} \quad (3.24)$$

la dispersion de vitesse de groupe par :

$$\delta V_g = \frac{1}{(d^2k/d\omega^2)_{\omega_0}} \quad (3.25)$$

et pour mettre en évidence la dépendance spectrale de l'indice :

$$\frac{dk}{d\omega} = \frac{\delta k}{\delta \omega} + \frac{\delta k}{\delta n} \cdot \frac{dn}{d\omega} \quad (3.26)$$

La vitesse de groupe s'écrit finalement :

$$V_g = \frac{c}{n + \omega \cdot dn/d\omega} \quad (3.27)$$

avec $n + \omega \cdot dn/d\omega = n_g$ l'indice de groupe.

Pour calculer la longueur quasistatique il faut calculer l'écart de vitesse de groupe entre la pompe et le signal en fs/mm :

$$evg = \frac{1}{V_g(\omega_{laser})} - \frac{1}{V_g(\omega_{Signal})} \quad (3.28)$$

Puis en tenant compte de la durée de l'impulsion Δt , la longueur quasistatique est donnée par :

$$L_{quasistatique} = \frac{\Delta t}{evg} \quad (3.29)$$

La dispersion de l'indice par rapport à la longueur d'onde étant positive, le signal infrarouge va plus vite que l'impulsion de pompe. La figure 3.7 montre la longueur quasistatique en fonction du signal amplifié. La courbe montre que les impulsions sont séparées au bout de quelques millimètres dans le cristal de β -BBO, pour des impulsions de $80fs$.

Pour utiliser efficacement un second cristal amplificateur, il faudra compenser la dispersion introduite par le premier, en séparant les impulsions de pompe et de signal pour retarder le signal afin qu'il soit de nouveau confondu en temps avec la pompe dans le second étage.

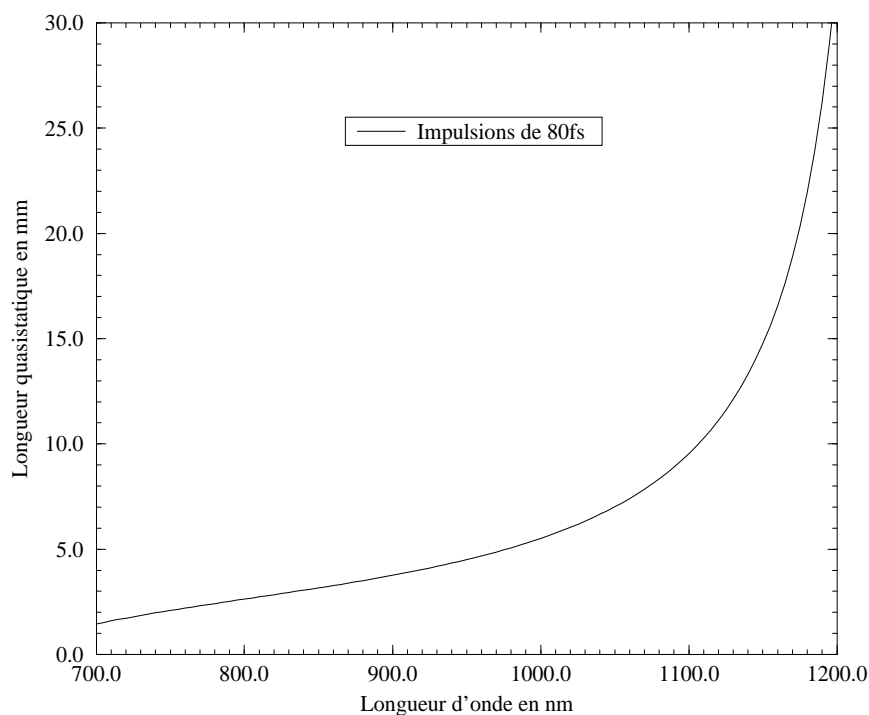


FIG. 3.7 –: *Longueur quasistatique en fonction de la longueur d'onde dans la plage de fonctionnement de l'amplificateur paramétrique*

3.2.4.6 Gain

Les calculs analytiques du gain d'un amplificateur paramétrique ne prennent pas en compte la vitesse de groupe des impulsions. L'efficacité de l'amplification paramétrique dans des cristaux comme β -BBO est telle que notre système sort de cette approximation.

Au lieu de faire un calcul sans grande valeur, nous avons préféré comparer le taux de conversion de l'énergie de pompe vers le signal avec ceux publiés pour d'autres systèmes.

Ces taux varient de 10% à 25%. Il est plus facile de mesurer la conversion de l'énergie du faisceau de pompe vers le signal que de mesurer directement le gain sur le signal. En effet, avant amplification celui-ci est trop faible pour être mesuré avec précision. Nous pouvons tout de même affirmer que dans le premier étage de l'amplificateur le gain sur le signal est supérieur à 1.10^4 .

3.2.4.7 Spectres

Pour une impulsion cohérente, il existe une relation entre la durée de l'impulsion et son spectre. Cette relation, dite de Fourier, s'évalue par le produit des largeurs temporelle et spectrale ($\Delta t \cdot \Delta \nu$). Pour une impulsion de forme temporelle gaussienne le produit $\Delta t \cdot \Delta \nu$ vaut 0.45, pour une impulsion de forme sécante hyperbolique $\Delta t \cdot \Delta \nu$ vaut 0.315.

L'amplification paramétrique dans β -BBO ne permet pas d'obtenir des impulsions limitées par la transformée de Fourier[67]. Cet élargissement spectral est dû à la dispersion de vitesse de groupe dans le cristal (voir la section 3.2.4.5). Elle est 5 fois plus importante pour le type I que pour le type II. Les largeurs spectrales pour nos impulsions paramétriques s'étendent typiquement de 200cm^{-1} à 1000cm^{-1} , soit de 14nm à 65nm pour des longueurs d'onde de 800nm à $1\mu\text{m}$ [67].

3.2.4.8 Accord de phase non colinéaire

Il est intéressant de considérer l'accord de phase non colinéaire. Après une présentation formelle, est présenté ici l'intérêt de l'accord de phase non colinéaire pour contrôler la différence de vitesse de groupe entre les impulsions de l'interaction.

Reprenant l'équation 3.11 pour l'accord de phase, nous décomposons chaque vecteur sur les axes parallèle et orthogonaux au vecteur d'onde du champ pompe :

$$n_e(\theta, \omega_P) \cdot \omega_P = n_o(\omega_S) \cdot \omega_S \cdot \cos \alpha + n_o(\omega_I) \cdot \omega_I \cdot \cos \beta \quad (3.30)$$

$$0 = n_o(\omega_S) \cdot \omega_S \cdot \sin \alpha + n_o(\omega_I) \cdot \omega_I \cdot \sin \beta \quad (3.31)$$

avec α l'angle entre \vec{k}_P et \vec{k}_S et β l'angle entre \vec{k}_P et \vec{k}_I .

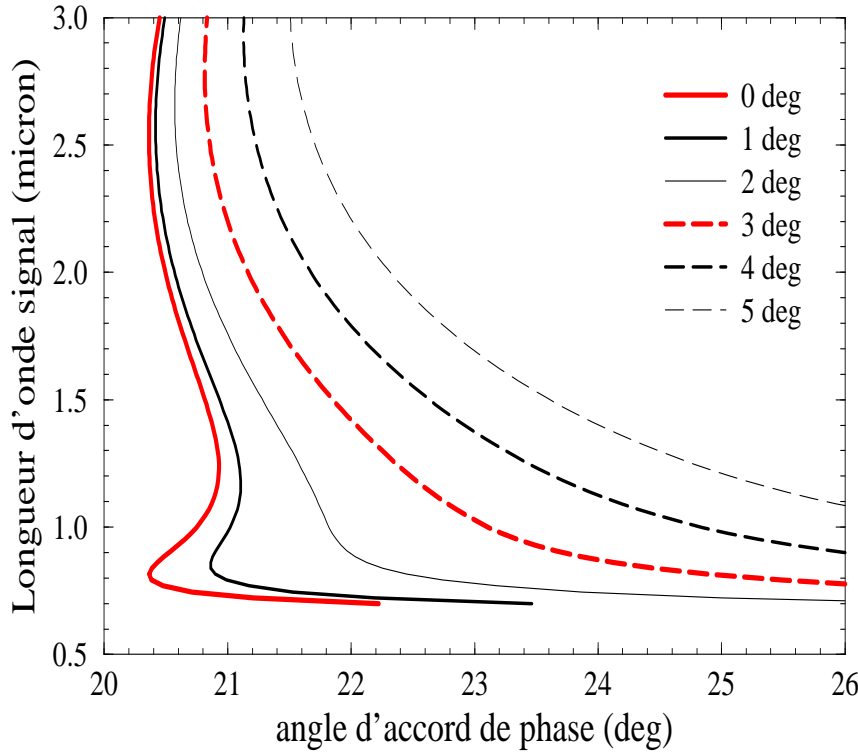


FIG. 3.8 —: Accords de phase non colinéaires pour l'amplification paramétrique de type I dans β -BBO avec une pompe à 614nm. Pour un angle α entre la pompe et le signal variant de 0 à 5 degrés.

En remplaçant β dans l'équation 3.30 par sa valeur calculée avec l'équation 3.31 nous obtenons l'équation d'accord de phase :

$$\sin^2(\theta) = \frac{\left(\frac{n_o(\omega_S) \cdot \omega_S \cdot \cos \alpha + n_o(\omega_I) \cdot \omega_I \cdot \cos(\arcsin(\frac{n_o(\omega_S) \cdot \omega_S}{n_o(\omega_I) \cdot \omega_I} \cdot \sin \alpha))}{\omega_P} \right)^{-2} - n_o^{-2}(\omega_P)}{n_e^{-2}(\omega_P) - n_o^{-2}(\omega_P)} \quad (3.32)$$

Nous observons pour des angles α variant de zéro à cinq degrés une déformation importante de la courbe d'accord de phase. La figure 3.8 montre que pour une même longueur d'onde amplifiée, suivant l'angle entre les champs pompe et signal, l'angle d'accord de phase est très différent. Ces courbes nous permettent de comprendre intuitivement que plus la pente d'une courbe d'accord de phase est forte plus l'acceptance angulaire de l'amplificateur paramétrique est importante, ainsi que l'acceptance spectrale. Comme les pentes sont différentes pour une même longueur d'onde suivant l'angle α , l'accord de phase permet de modifier l'acceptance spectrale de l'amplificateur paramétrique.

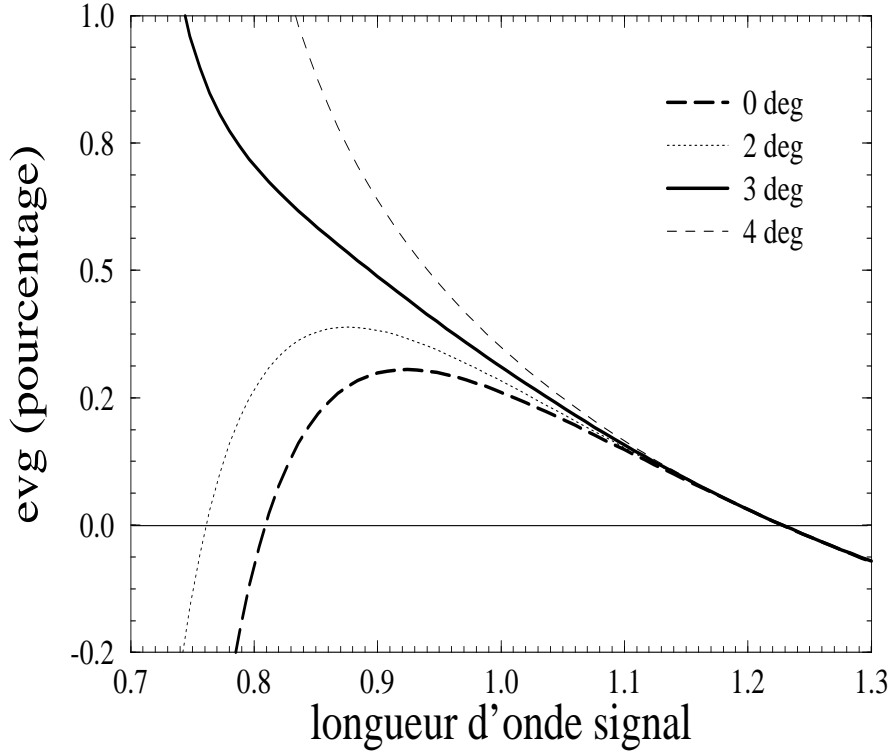


FIG. 3.9 –: *Ecart de vitesse de groupe relatif entre le signal et le complémentaire* $\left(\frac{V_{gi}^{-1} - V_{gs}^{-1}}{V_{gs}^{-1}} \right)$ *en fonction de la longueur d'onde signal pour différentes valeurs de l'angle α entre le signal et la pompe.*

L'écart de vitesse de groupe (calculé en section 3.2.4.5) conditionne l'acceptance spectrale de l'amplificateur paramétrique [65]. La figure 3.9 montre le pourcentage d'écart de vitesse de groupe entre le signal et son complémentaire paramétrique, en fonction de l'angle α entre les directions signal et pompe¹¹. La courbe correspondant à l'accord de phase colinéaire présente deux points caractéristiques : Autour de 800nm et de 1230nm l'écart de vitesse de groupe est nul. Sur la courbe d'accord de phase, ces deux points correspondent à deux régions pour lesquelles la courbe a une pente verticale. En particulier la région autour de 1230nm correspond à la dégénérescence entre le signal et son complémentaire ; le second point sera appelé, par analogie, pseudo dégénérescence.

11. Les simulations faites pour l'écart de vitesse de groupe entre le signal et la pompe ainsi qu'entre le complémentaire et la pompe, montrent le même comportement.

L'acceptance spectrale de l'amplificateur paramétrique augmente quand l'écart de vitesse de groupe diminue. De ce fait, la densité spectrale de gain diminue aussi, réduisant le gain pour une longueur d'onde donnée. A la dégénérescence et à la pseudo dégénérescence, l'acceptance spectrale est supérieure à 70nm et peut atteindre plusieurs centaines de nanomètres.

De plus, l'amplificateur paramétrique doit faire une sélection spectrale dans le continuum avec lequel il est ensemencé. Le continuum ayant une importante dérive temporelle de fréquence (chirp), l'amplification sur une bande trop large conduit à amplifier des impulsions dont les caractéristiques temps-fréquence sont loin de correspondre à celle d'une impulsion femtoseconde limitée par la transformée de Fourier.

L'amplificateur paramétrique optique pompé à 614nm ayant sur sa plage d'accord deux régions d'acceptance spectrale large, sa plage d'accordabilité effective pour amplifier un continuum est limitée¹².

L'accord de phase non colinéaire, avec un angle α de 3 degrés entre la pompe et le signal, permet de supprimer la zone de pseudo dégénérescence comme le montre la figure 3.8. Ce résultat est confirmé par la courbe correspondant au cas non colinéaire à 3 degrés de la figure 3.9 qui montre un comportement monotone de l'écart de vitesse de groupe, qui augmente doucement lorsque le système s'éloigne de la dégénérescence. L'écart de vitesse de groupe augmentant, l'acceptance spectrale diminue, tout en restant suffisante pour l'amplification d'impulsions femtosecondes.

De cette manière la sélection spectrale, effectuée dans le continuum par l'amplificateur paramétrique non colinéaire, est suffisante pour voir la densité spectrale de gain augmenter et amplifier des impulsions proches de la limite de Fourier pour un tel système (voir la section 3.2.4.7). Cette solution permet un accord en longueur d'onde sans avoir à ajuster un filtre extérieur, c'est de l'auto-filtrage spectral.

3.2.5 Génération de 2^{de} harmonique

L'accord de phase pour le doublage est proche de celui de l'amplification paramétrique. Les cristaux de β -BBO dont nous disposons sont alors utilisables pour la somme de fréquences ou le doublage de type I.

Considérons le doublage du signal, la conservation de l'énergie donne :

$$\omega_S + \omega_S = \omega_{2S} \quad (3.33)$$

12. Cette plage d'accord en longueur d'onde est comparable à celle d'un simple oscillateur Ti:Sa.

avec ω_{2S} le signal doublé. Choissant encore un accord de phase de type I colinéaire, il s'écrit :

$$2.n_o(\omega_S).\omega_S = n_e(\theta, 2\omega_S).2\omega_S \quad (3.34)$$

avec l'ellipsoïde des indices pour le ω_{2S} :

$$\frac{1}{n_e^2(\theta, 2\omega_S)} = \frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2(2\omega_S)} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_e^2(2\omega_S)} \quad (3.35)$$

Nous obtenons l'angle d'accord de phase du doublage illustré par la figure 3.10 pour des longueurs d'onde dans le proche infrarouge :

$$\sin^2(\theta) = \frac{n_o^{-2}(\omega_S) - n_o^{-2}(2\omega_S)}{n_e^{-2}(2\omega_S) - n_o^{-2}(2\omega_S)} \quad (3.36)$$

Le doublage dans un second cristal est un moyen pratique d'observer à l'oeil l'infrarouge amplifié. La gamme que nous amplifions correspond, une fois doublée, à des longueurs d'onde dans le visible ($780 - 1000nm \rightarrow 390 - 500nm$).

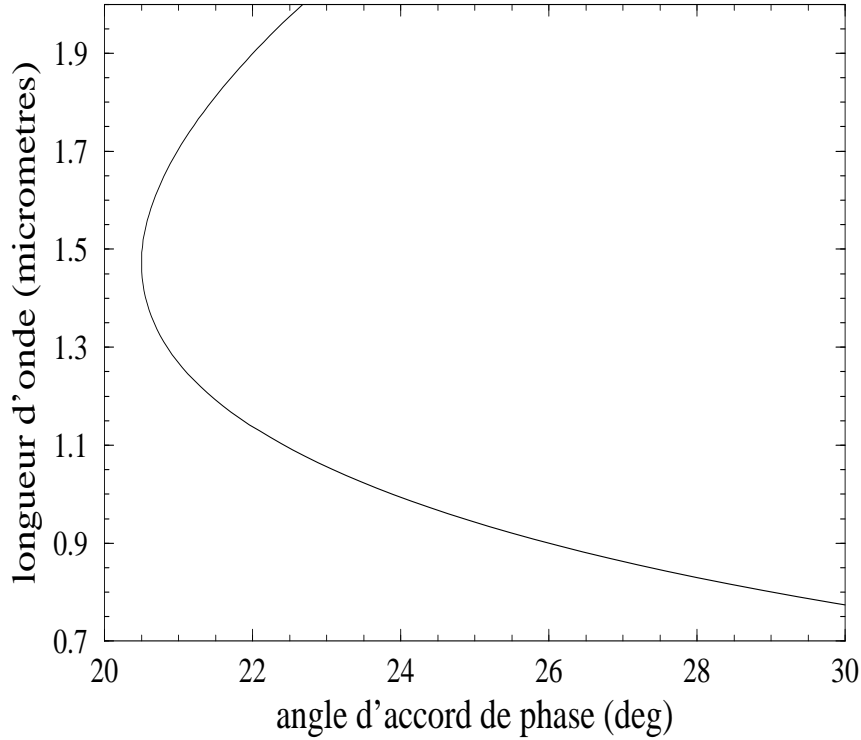


FIG. 3.10 –: Accord de phase interne pour le doublage

3.3 Laser femtoseconde

Avant de décrire la réalisation de l'amplificateur paramétrique, je vais brièvement présenter le laser de source.

Ce laser est un oscillateur femtoseconde à colorants amplifié. Il délivre des impulsions ayant une largeur à mi-hauteur de 90fs , une énergie de 4mJ à un taux de répétition de 10Hz . Ce système laser fait partie de la première génération des lasers femtosecondes[68], il a servi à faire les premières expériences de physique des plasmas au Laboratoire d'Optique Appliquée.

3.3.1 L'oscillateur

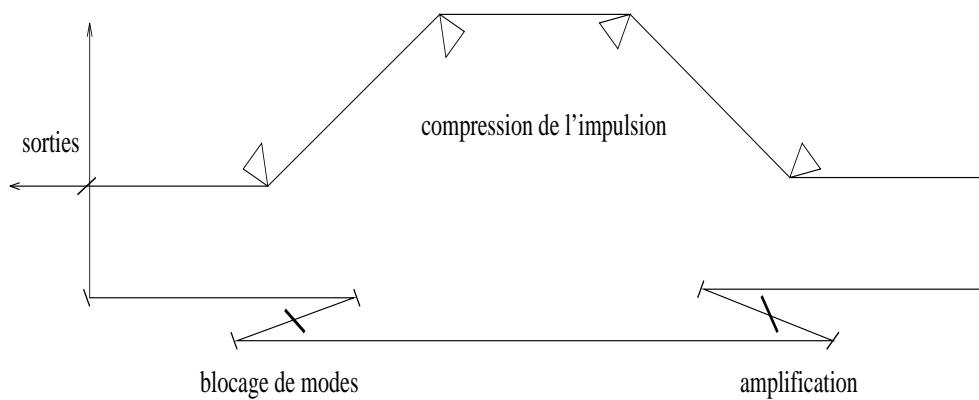


FIG. 3.11 –: *Cavité laser à colorants femtoseconde CPM*

L'oscillateur est un laser à colorant fonctionnant en mode impulsif femtoseconde grâce au blocage de modes par collision des impulsions (CPM: *Colliding-Pulse Mode-Locking*).

La cavité est annulaire et comprend trois parties :

- **Le milieu amplificateur.** Il est formé d'une sous-cavité dans laquelle un jet de Rhodamine 6G pompé par un laser à argon continu est le milieu amplificateur. Les colorants présentent l'avantage d'avoir un spectre d'émission large indispensable pour construire un laser femtoseconde. La Rhodamine 6G a un spectre d'absorption centré autour de 540nm et une bande d'émission sur des énergies plus basses dans une bande spectrale s'étendant de 550nm à 640nm avec un maximum à 570nm [69].
- **La sous-cavité du jet d'absorbant saturable.** Elle assure le blocage de modes. Le colorant utilisé est la DODCI, il a la particularité d'être saturable, donc de devenir transparent au-dessus d'un certain seuil d'intensité.

Lorsqu'il n'y a pas de rapport de phase entre les différents modes longitudinaux de la cavité, ils sont indépendamment absorbés par la DODCI. Seuls les modes arrivant ensemble (en phase) sur le jet saturent celui-ci et peuvent se propager dans la cavité. Du fait de la longueur de la cavité (3m) les impulsions ainsi générées ont une récurrence de 100MHz . Le spectre d'absorption de la DODCI étant décalé vers le bleu par rapport à celui d'émission de la Rhodamine 6G, lors du blocage de modes, la longueur d'onde centrale de l'impulsion est centrée à 620nm .

- **Les prismes de compression temporelle de l'impulsion.** Bien que l'ensemble des modes formant l'impulsion soient en phase sur l'absorbant saturable, ils ont des vitesses de propagation différentes dans la cavité¹³. Il en résulte que l'impulsion est courte au niveau du blocage de modes et se disperse dans le reste de la cavité. Les prismes sont là pour compenser cette dispersion de vitesse de groupe dans la cavité. Les longueurs d'onde de l'impulsion sur le côté *rouge* du spectre se propageant plus vite que celles du côté *bleu* elles doivent parcourir une distance plus grande pour arriver en même temps que les autres après un tour de cavité. Pour cela les prismes donnent à la cavité une longueur variable suivant la longueur d'onde, augmentant le trajet de la partie rouge par rapport à la partie bleue. Pour recombinaison spatialement l'ensemble du spectre de l'impulsion les prismes sont disposés en deux couples en vis-à-vis.

L'ensemble forme un oscillateur femtoseconde fournissant des impulsions à 620nm de 50fs à un taux de répétition de 100MHz avec une énergie par impulsion de quelques nanoJoules, soit une dizaine de milliwatts de puissance moyenne.

3.3.2 L'amplificateur

L'énergie par impulsion à la sortie de l'oscillateur étant trop faible pour nos travaux, il faut ensuite l'amplifier.

Pour cela nous disposons d'un amplificateur à colorant à 6 étages. Chaque étage est composé d'un capillaire traversé par le laser et par une circulation de colorant. Pour pomper le colorant de manière uniforme les capillaires sont creusés dans des prismes : les prismes de béthune. Ces prismes répartissent par réflexions sur leurs faces le laser de pompe de manière homogène dans le capillaire.

Le laser de pompe pour l'amplification est un Nd:YAG (Quanta-ray) délivrant des impulsions nanosecondes à une récurrence de 10Hz . Les concentrations des colorants (en dilution dans du méthanol ou de l'eau) sont adaptées aux niveaux de pompage du Nd:YAG pour un gain homogène sur toute la section du faisceau.

13. Les modes longitudinaux d'une cavité sont à des longueurs d'onde discrètes équidistantes.

Le premier étage d'amplification est composé d'un mélange d'eau et de Keton-red 620. Il a un gain de 100 et déplace aussi le centre du spectre de l'oscillateur de $620nm$ à $615nm$. Les étages suivants sont composés d'une dilution dans du méthanol de sulforhodamine; leurs gains varient de 50 à 10 pour les derniers étages. A la sortie de l'amplificateur l'énergie du laser est de $4mJ$.

Pour limiter les pertes dans l'amplificateur, les étages d'amplifications sont imagés les uns sur les autres de manière à réaliser une adaptation de champ.

De plus, l'amplificateur image à l'infini le miroir de sortie de l'oscillateur.

3.3.3 L'oscillateur et son amplificateur

le système complet, oscillateur CPM et amplificateur, délivre des impulsions centrées à $615nm$ avec une largeur spectrale de $7nm$, une durée de $90fs$, Une énergie de $4mJ$ et un taux de répétition de $10Hz$. Pour nos expériences nous bénéficions d'environ $\frac{1}{8}$ de l'énergie totale.

3.4 L'amplificateur paramétrique

Bénéficiant du laser CPM à colorants amplifié présenté en section 3.3, nous disposons d'un faisceau initial d'environ $500\mu J$, à $615nm$ et $90fs$ avec un taux de répétition de $10Hz$. La moitié de son énergie est utilisée comme laser de pompe pour notre amplificateur paramétrique.

L'amplificateur paramétrique est divisé en trois parties :

- La source infrarouge par génération de continuum.
- Le premier étage d'amplification, il sert de préamplificateur pour élever l'énergie de l'infrarouge tout en conservant un spectre homogène et la forme spatiale originale du faisceau IR.
- Le second étage d'amplification apporte le complément d'énergie au faisceau infrarouge.

La figure 3.12 montre un schéma de l'amplificateur paramétrique.

3.4.1 Génération de continuum

Le signal infrarouge que nous amplifions dans l'amplificateur paramétrique optique, est issu d'un continuum de lumière blanche. Le continuum est obtenu en focalisant le faisceau du bras signal sur une lame fine de saphir¹⁴. Elle est placée sur un support déplaçable dans un système afocal de grossissement 2/3.

14. La lame fine de saphir a l'avantage de produire un continuum très homogène à un seuil plus bas qu'une cuve d'eau.

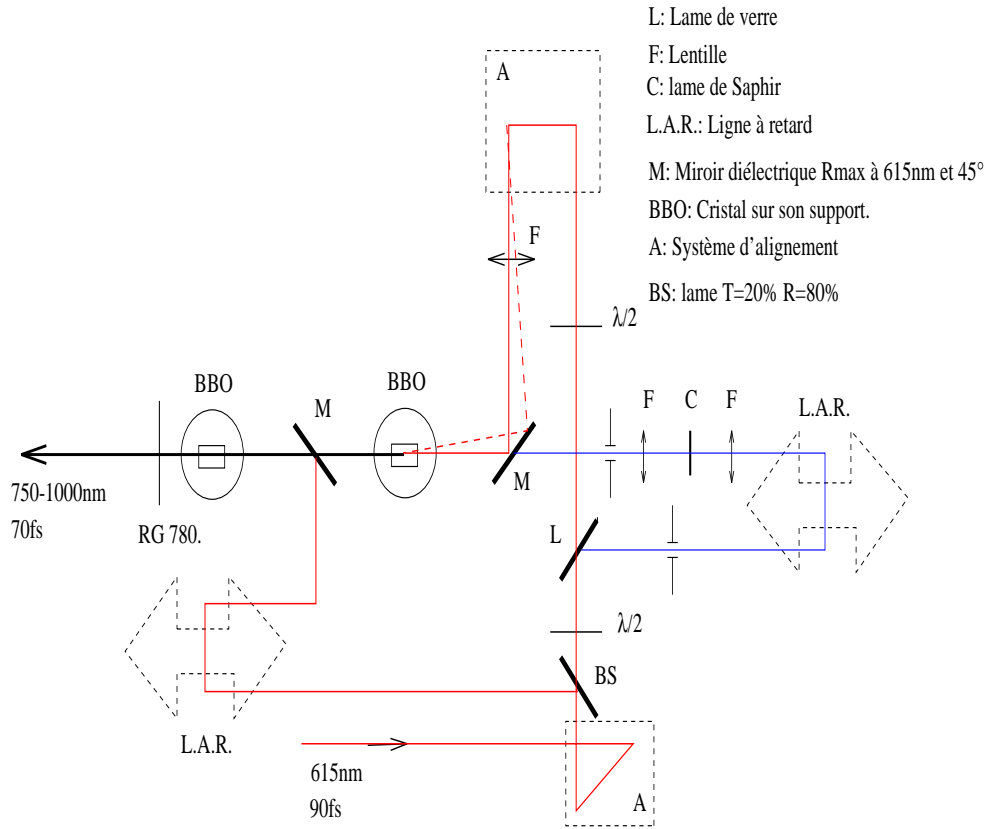


FIG. 3.12 –: Schéma de montage de l'APO

La génération de continuum est mal connue théoriquement, elle est liée au mélange de plusieurs effets non linéaires comme l'automodulation de phase [66].

Le bras signal est polarisé verticalement à l'aide d'une lame à retard $\lambda/2$ pour être perpendiculaire à la polarisation de la pompe et être dans la configuration de l'amplification de Type I. La lame à retard est placée devant la lame de verre pour augmenter la réflexion de celle-ci. En polarisation horizontale le faisceau est pratiquement à l'incidence de Brewster. Une seconde lame à retard retourne le faisceau pompe en polarisation horizontale.

Pour garder la cohérence du continuum, il faut que celui-ci soit juste au seuil. Pour régler le continuum au seuil nous déplaçons la lame de saphir par rapport au col du faisceau. L'énergie nécessaire à générer le continuum est de l'ordre du micro Joule.

Le faisceau ne devant pas être trop focalisé sur le saphir, il est prélevé à partir d'un trou d'un millimètre limitant la taille du point focal. Nous avons remarqué que si le faisceau est focalisé sur une surface trop petite, il est difficile d'obtenir un

continuum au seuil ; au-dessus du seuil, le continuum présente plusieurs filaments incohérents entre eux.

Pour ne pas récupérer les fluctuations en anneaux peu stables autour du faisceau continuum, nous positionnons un trou d'un millimètre au centre du faisceau après la lentille de recollection. Cette lentille sert aussi à focaliser le continuum devant le β -BBO au même endroit que le col du faisceau pompe.

Un continuum, même au seuil, présente un chirp linéaire. Le large spectre IR amplifié dans le continuum (typiquement $15 - 20nm$) présente un chirp qui reste négligeable au regard du fait que l'impulsion que nous extrayons de l'amplificateur a une durée un tiers plus courte que l'impulsion fondamentale (voir la section 3.4.5).

3.4.2 Faisceaux de pompe

Les faisceaux de pompe doivent avoir une forme spatiale la plus propre possible. Le profil du gain en dépend. Comme nous bénéficions d'un faisceau d'environ 1 mJ, il est possible de le filtrer en gardant une intensité suffisante. Il suffit d'environ $100\mu J$ pour les pompes de l'amplificateur paramétrique.

Nous avons obtenu les meilleurs rendements de conversion (pompe-signal IR) pour des surfaces de pompe dans le β -BBO importantes. Trop focaliser sur le cristal entraîne des effets secondaires comme des modulations du spectre (voir la section 3.5.2 à la page 84).

Nous ne garderons que le centre du faisceau de départ, sacrifiant l'énergie à la qualité du profil spatial.

Pour compenser l'autofocalisation liée à l'intensité de pompe incidente proche de celle suffisante pour générer du continuum, les faisceaux signal et pompe sont légèrement divergents lors de la traversée du β -BBO [70].

3.4.3 Accord de phase dans β -BBO

La courbe d'accord de phase théorique de la figure 3.3 ne permet pas un réglage expérimental de l'angle d'incidence des faisceaux sur le cristal. Il faut tenir compte de l'angle de taille de nos cristaux ainsi que de la réfraction.

Nos cristaux sont taillés aux angles $\theta = 21\text{ deg}$ et $\phi = 0\text{ deg}$. En utilisant les indices calculés pour l'accord de phase , pour tenir compte de la réfraction, on obtient un angle d'accord de phase à l'extérieur du cristal par rapport à la normale au plan d'entrée du β -BBO, voir figure 3.13.

La figure 3.13 montre qu'il existe une fourchette pour l'angle d'accord de phase d'environ 1 deg pour obtenir l'ensemble de la plage d'accordabilité de l'amplificateur.

Il est indispensable de contrôler avec un spectroscope que les deux cristaux sont accordés sur la même longueur d'onde. Dans le cas contraire le spectre présente deux bosses et l'impulsion est plus longue en temps à cause de la dispersion de vitesse de groupe.

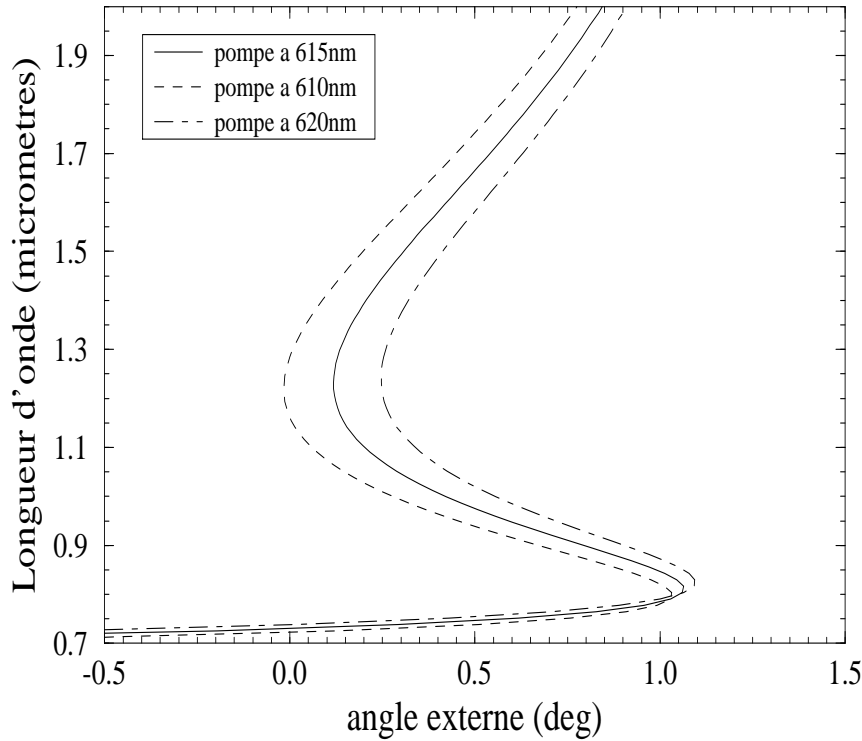


FIG. 3.13 –: *Accord de phase pour l'amplification paramétrique de type I avec réfraction dans le cristal.*

Une manière pratique de contrôler la génération d'infrarouge est de doubler le signal avec un troisième cristal de β -BBO. L'orientation de celui-ci, compte tenu de la réfraction, donne l'accord de phase de la figure 3.14.

3.4.4 Les deux étages d'amplification

L'amplification paramétrique de continuum étant un phénomène d'ordre élevé, il est sensible aux fluctuations du laser initial. Pour s'affranchir de ces fluctuations il faut chercher à travailler en régime de saturation du gain.

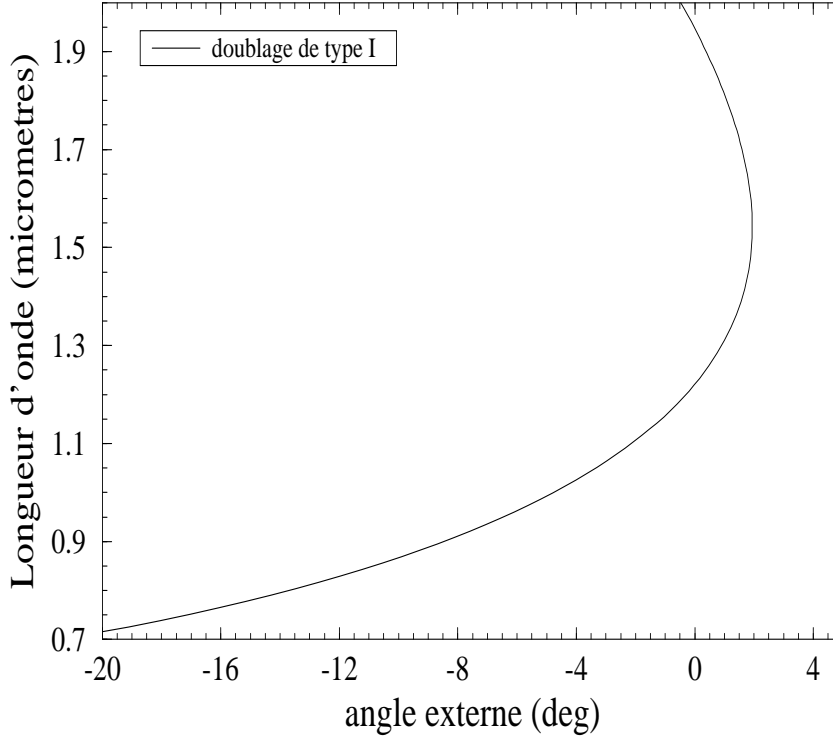


FIG. 3.14 –: *Accord de phase pour le doublage avec réfraction*

Le gain sur le premier étage n'est pas suffisant pour avoir les quelques μJ nécessaires sur toute la plage spectrale d'accord théorique du β -BBO ce qui rend indispensable le montage d'un second étage amplificateur. De plus un champ de pompe trop fort entraîne des effets non linéaires comme l'automodulation de phase qui modulent le spectre de l'impulsion et augmente sa durée.

Le premier étage est réalisé en accord de phase non colinéaire. Nous avons choisi un angle de 3 deg entre les champs pompe et signal de manière à limiter la double réfraction. L'amplification non colinéaire nous permet d'augmenter le gain en augmentant la longueur quasistatique et améliore le profil spatial du faisceau IR en compensant la double réfraction.

Une ligne à retard permet d'adapter le délai sur le second bras de pompe à celui du signal. En observant avec un spectromètre à réseaux la forme du spectre, nous réglons l'accord de phase des deux étages sur la même longueur d'onde centrale¹⁵.

¹⁵. Il est possible d'obtenir un spectre très large en décalant l'accord de phase du second étage d'amplification par rapport au premier.

L'inconvénient d'un second étage d'amplification réside dans le fait qu'il amplifie aussi la fluorescence paramétrique du premier étage de l'amplificateur paramétrique. Il faut donc optimiser la densité d'énergie de pompe sur le premier étage de manière à avoir une amplification du continuum avec un résiduel de fluorescence paramétrique faible.

3.4.5 Compression temporelle de l'impulsion

Nous avons constaté que le continuum présente un chirp important. Pour conserver une impulsion courte il faut donc limiter l'étendue du spectre ou recomprimer l'impulsion dans une ligne de prismes.

La difficulté, pour une compression temporelle de l'impulsion, repose sur le fait qu'il faut conserver un maximum d'énergie malgré les pertes importantes dans la ligne. Pour cela il est judicieux de placer la ligne entre les deux étages d'amplification¹⁶. De cette manière, les pertes introduites par la ligne sont compensées par une amplification plus importante dans le second étage de l'amplificateur paramétrique.

La dispersion de vitesse de groupe entraînant un élargissement spectral et une perte de cohérence; il n'est donc pas possible de recomprimer la durée de l'impulsion à sa limite théorique. Par contre, nous avons mesuré des produits durée largeur spectrale de 2 fois la limite théorique nous permettant d'affirmer qu'il n'est pas utile de recomprimer le chirp du continuum avec une ligne de prisme.

Nous avons choisi de limiter l'étendue du spectre pour limiter l'effet du chirp. Pour cela il faut, grâce à un spectroscopie à réseau, ajuster l'accord de phase entre les deux étages sur la même longueur d'onde ainsi que les délais (le Chirp entraîne un délai entre les différentes longueurs d'onde du spectre du continuum).

De cette façon nous obtenons des impulsions dont les spectres ont des profils de sécantes hyperboliques carrées et une durée inférieure d'un tiers à la durée du laser fondamental à $615nm$.

3.5 Caractérisation

Pour pouvoir utiliser le faisceau infrarouge issu de l'amplificateur il faut que l'impulsion soit courte ($\leq 80fs$), d'une énergie d'au moins $2\mu J$, avec un spectre

16. Il est presque impossible de la placer entre la génération du continuum et le premier étage d'amplification. L'alignement devient alors très difficile du fait de la faible énergie contenue à la longueur d'onde voulue dans le continuum.

symétrique centré sur une longueur d'onde mesurable. De plus l'accord en longueur d'onde doit être le plus large possible (de 780 à 1000nm). Cette section regroupe les résultats des mesures faites sur l'amplificateur paramétrique optique.

3.5.1 Energie et stabilité

Les quelques microjoules nécessaires pour la physique sont obtenus avec un seul cristal. L'amplificateur peut délivrer à la sortie du premier étage $1\mu J$ quotidiennement avec un faisceau de pompe très filtré et $5\mu J$ autrement. Avec le second étage l'énergie en sortie sur l'ensemble de la plage d'accord est supérieure ou égale à $5\mu J$.

Le second étage est utile pour avoir une énergie suffisante sur tout le spectre d'accord en longueur d'onde.

Les fluctuations en énergie de l'amplificateur sont liées au continuum et à l'effet paramétrique qui sont des phénomènes d'ordres élevés.

Les fluctuations d'énergie du faisceau IR ont une variation quadratique par rapport à celles du laser de source. De plus la génération de continuum provoque un phénomène de seuil sur la création d'infrarouge ; lorsque le laser de source est vraiment instable (avec des variations supérieures à 10%) la présence d'un seuil dans la génération du continuum provoque un fonctionnement de l'amplificateur de style *tout ou rien* (voir la figure 3.15). Une solution pour limiter cet inconvénient est de pousser l'énergie pour la création du continuum de manière à fonctionner largement au-dessus du seuil, tout en restant en dessous du seuil de multi filamentation.

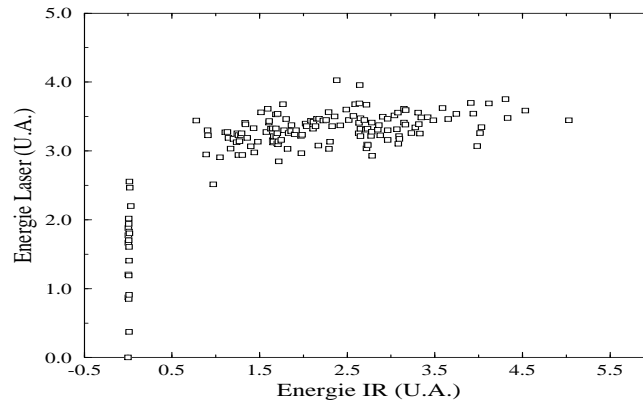


FIG. 3.15 –: *Fonctionnement et stabilité de l'amplificateur paramétrique optique*

3.5.2 Spectres

Une analyse spectroscopique permet de connaître l'étendue spectrale de la source ainsi que sa finesse.

Le spectre de l'impulsion initiale (figure 3.16) est centré à $615nm$ avec une largeur spectrale d'environ $10nm$.

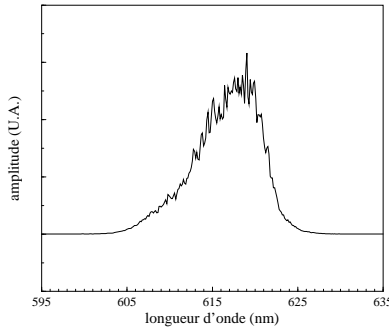


FIG. 3.16 –: *Spectre de l'impulsion à 620nm*

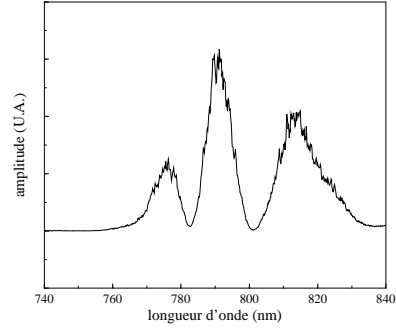


FIG. 3.17 –: *Spectre infrarouge paramétrique modulé*

Le spectre de la figure 3.17 permet de mettre en évidence des modulations qui perturbent l'émission paramétrique. Ces modulations sont dues à une densité d'énergie trop forte sur le β -BBO.

Nous obtenons un spectre correct pour une densité d'énergie moindre sur le β -BBO (figure 3.18), tout en améliorant le gain de l'amplificateur.

La largeur des spectres obtenus varie de $15nm$ autour des longueurs d'onde proches de $800nm$, jusqu'à $60nm$ en s'approchant de $960nm$. Ces largeurs spectrales correspondent à des produits $\Delta t \cdot \Delta \nu = 0.75$, soit un peu plus de 2 fois la limite de Fourier pour des impulsions de forme sécante hyperbolique.

3.5.3 Durée

Faire une auto-corrélation du signal est intéressant pour deux raisons :

- Vérifier que la durée des impulsions est bien de l'ordre de la centaine de femtosecondes.
- Observer la durée de l'émission spontanée paramétrique ou super fluorescence paramétrique.

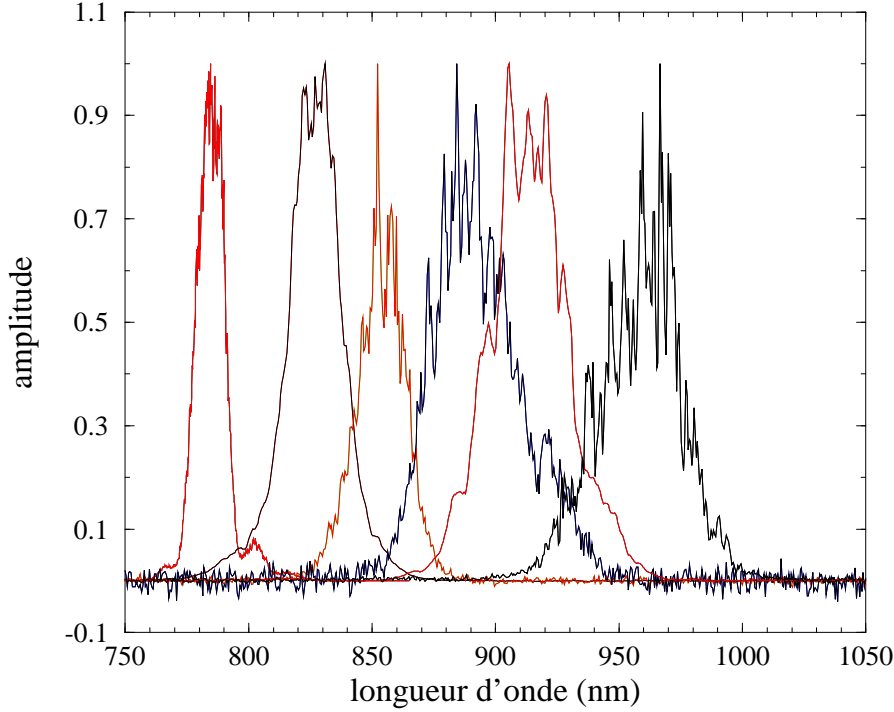


FIG. 3.18 –: *Exemples de spectres infrarouges paramétriques*

Nous pouvons faire l'auto-corrélation du 620nm avec notre système expérimental à deux bras (figure 3.19). Par contre, pour mesurer la durée de l'impulsion infrarouge, nous sommes obligés de faire une corrélation croisée entre le 620nm et l'infrarouge. Pour cela, comme pour le doublage, nous faisons la somme du 620nm avec l'infrarouge dans un cristal de $\beta\text{-BBO}$ de $500\mu\text{m}$ d'épaisseur (figure 3.20).

L'impulsion à 620nm a une forme temporelle de sécante hyperbolique carrée (sech^2). Nous pouvons en déduire sa durée en divisant la largeur à mi-hauteur de l'auto-corrélation par le facteur 1.54.

En comparant ensuite la durée de la corrélation croisée avec celle de l'auto-corrélation nous pouvons en déduire la durée approximative de l'impulsion infrarouge.

La corrélation croisée étant plus courte que l'auto-corrélation, l'impulsion infrarouge est plus courte que l'impulsion à 620nm . Cela peut s'expliquer par le fait que nous amplifions un continuum au seuil et que celui-ci est plus court que l'impulsion qui le génère ou que le système paramétrique compense en partie le chirp du continuum.

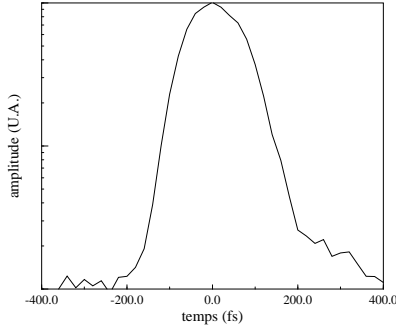


FIG. 3.19 –: Auto-correlation à 620nm donnant une durée à mi-hauteur de 90fs

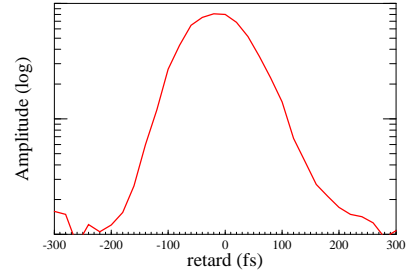


FIG. 3.20 –: Corrélation croisée entre le 620nm et l'infrarouge paramétrique (810nm) permettant de calculer une durée de l'impulsion IR de 67fs

Les performances optimales que nous avons obtenues sont de 90fs pour le laser à 615nm et de 67fs pour l'infrarouge à 810nm .

Nous avons aussi mesuré la corrélation croisée entre la fluorescence paramétrique et le laser à 615nm (figure 3.21) et avons observé des durées équivalentes à la durée du laser ou un peu plus longues. La figure 3.21 correspond à une durée de 150fs pour une durée du laser à 615nm de 125fs ce jour là.

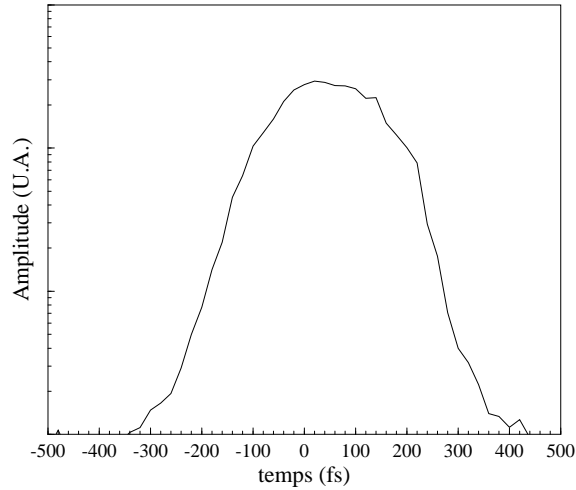


FIG. 3.21 –: Corrélation croisée entre le 620nm et l'émission spontanée paramétrique donnant une durée de 150fs de l'infrarouge à 810nm pour une impulsion de 125fs à 615nm

3.5.4 Forme spatiale du faisceau

L'accord de phase dans le β -BBO étant critique sur un angle (θ), l'amplificateur paramétrique fait une découpe par le gain du faisceau infrarouge. La forme en sortie est donc ovale.

Pour conserver une forme ronde et non un ovale, il faut réduire la divergence de l'infrarouge et de la pompe, principalement dans le second étage pour lequel le diamètre du faisceau est plus gros (environ $3mm$).

Il n'est pas possible de trop réduire la taille du faisceau sur le cristal à cause de la densité d'énergie. La dimension choisie correspond à un compromis entre les deux effets.

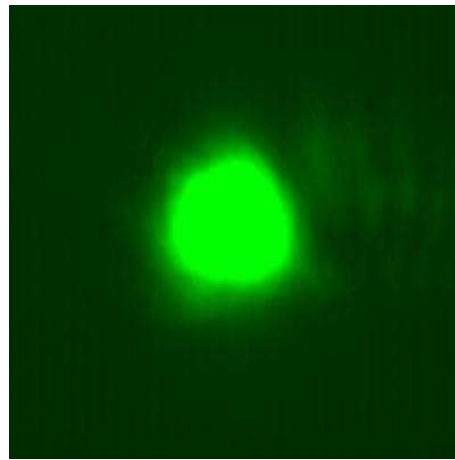


FIG. 3.22 –: *Image du faisceau en sortie de l'amplificateur paramétrique optique. Cette image est saturée pour les plus hautes intensités, ce qui cache des modulations d'amplitudes qui sont le lot commun de beaucoup d'amplificateurs paramétriques*

L'amplification non colinéaire dans le premier étage compensant la double réfraction il n'y a pas de découpe par le gain dans le faisceau lié à une séparation des faisceaux pompe et signal.

La forme du faisceau est aussi beaucoup perturbée par la qualité spatiale du continuum. Celui-ci, même au seuil, n'est pas toujours homogène et généralement les amplificateurs paramétriques de continuum ont une qualité de faisceau médiocre. La figure 3.22 montre une image du faisceau prise avec une caméra vidéo à $50cm$ de la sortie de l'amplificateur paramétrique optique.

3.5.5 Accordabilité

La plage d'accordabilité en longueurs d'onde de l'amplificateur paramétrique optique s'étend de $780nm$ à $960nm$. Nous remarquons que cela correspond à une zone de la courbe d'accord de phase (figure 3.13) entre la dégénérescence à $1230nm$ et un retour de la courbe permettant d'amplifier des longueurs d'onde plus basses avec les mêmes angles.

Nous appelons dégénérescence l'amplification paramétrique à $1230nm$ (précisément) cela correspond à la longueur d'onde double, donc la fréquence moitié du champ pompe. Elle est difficilement approchable car l'accord de phase est réalisé pour une très grande plage spectrale autour de $1230nm$ ¹⁷.

Le signal complémentaire se situe sur la partie de la courbe d'accord de phase décrivant les longueurs d'onde supérieures à $1230nm$.

Nous n'avons jamais obtenu de longueurs d'onde inférieures à $780nm$, malgré un accord de phase théorique possible.

Amplifier des longueurs d'ondes en dessous de $780nm$ produit un champ complémentaire supérieur à $2.6\mu m$ (voir la figure 3.4). La différence de vitesse de groupe entre les deux ondes limite alors le gain paramétrique, ce qui explique peut être cette limitation de la plage d'accord de phase. En effet, nous observons sur la figure 3.9 que, pour l'accord de phase non colinéaire que nous avons choisi, l'écart de vitesse de groupe augmente de manière importante vers les basses longueurs d'onde. L'acceptance spectrale du système est alors sûrement insuffisante. Il faut aussi remarquer que, de toute façon, le filtre *RG780* qui sert à couper la pompe en sortie de l'amplificateur paramétrique optique coupe déjà la moitié de l'énergie à $780nm$.

3.6 Conclusion

L'amplificateur paramétrique optique délivre des impulsions de $80fs$ à $10Hz$, d'une énergie de quelques micro Joules. La plage d'accord en longueurs d'onde s'étend de $780nm$ à $960nm$ avec des spectres de $15nm$ à $65nm$ de large.

17. pour travailler près de la dégénérescence, il faut placer un filtre interférentiel entre l'amplificateur paramétrique et le continuum de manière à ne sélectionner qu'une petite plage de longueur d'onde à amplifier.

Chapitre 4

Expériences

4.1 Introduction

Ce chapitre expérimental est divisé en trois parties :

La première partie présente le dispositif expérimental d'acquisition des données que j'ai réalisé.

La deuxième partie concerne les mesures de phonons optique faites pour valider l'expérience de mesure de déphasage par technique de lentille de Kerr et illustrer les calculs sur le vecteur d'onde.

La troisième et dernière partie rassemble les mesures de la dynamique temporelle de déphasages liés à la cascade de $\chi^{(2)}$ et à des cascades de $\chi^{(2)}$ et $\chi^{(4)}$.

4.2 Dispositif expérimental

L'ensemble des expériences présentées dans ce chapitre sont résolues en temps. Ce sont des expériences de type pompe sonde à deux ou trois faisceaux.

Le faisceau de sonde est directement prélevé sur le laser à $615nm$; son énergie est ajustable de 0 à $1\mu J$. Il a une polarisation linéaire dans la direction de notre choix grâce à une lame $\lambda/2$ suivie d'un polariseur Glan-Taylor large bande de taux d'extinction 10^4 . Son diamètre approximatif au point focal est de $50\mu m$.

Le faisceau pompe provient, soit du laser à $615nm$, soit de l'amplificateur paramétrique présenté au chapitre 3 ; il est alors accordable dans l'infrarouge proche de $780nm$ à $960nm$ avec une énergie de l'ordre du micro Joule et une polarisation verticale. Le diamètre au point focal du faisceau pompe dépend de la longueur d'onde choisie et de la qualité spatiale du faisceau ; il mesure approximativement $100\mu m$.

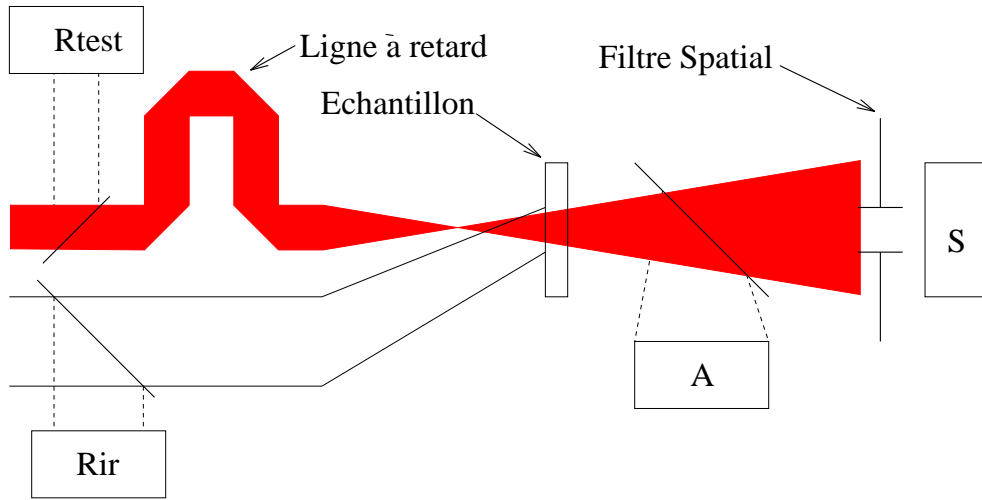


FIG. 4.1 –: Schéma de principe des expériences pompe sonde. Les photodiodes de référence sont notées Rtest sur la sonde et Rir sur la pompe; celles des signaux sont notées S pour le signal filtré et A pour le flux transmis après l'échantillon.

Pour les expériences à deux longueurs d'onde, les faisceaux pompe et sonde sont strictement colinéaires. Pour les superposer nous utilisons un miroir dichroïque réfléchissant le 615nm à 45° et étant transparent pour le proche infrarouge. Pour les expériences à 615nm les deux faisceaux ont un écartement angulaire faible de l'ordre de 2° . Cet angle permet de séparer le faisceau signal du faisceau pompe sur le détecteur; il permet un accord de phase non colinéaire lors des expériences sur le doublage présentées à la section 4.4.1.1.

La résolution temporelle est obtenue grâce à un décalage temporel du faisceau sonde par rapport au faisceau pompe. Pour cela nous utilisons une ligne à retard, modifiant le trajet optique du faisceau sonde par rapport à celui du faisceau pompe. Les impulsions ont une durée d'environ 100fs et une forme de type sech^2 mesurable par auto-corrélation. Il est possible de mesurer de cette manière des variations temporelles du signal entre la dizaine de femtosecondes et quelques picosecondes.

La position relative des points focaux des faisceaux pompe et sonde par rapport à l'échantillon est définie dans le chapitre 1 sur la détection de phase. Je rappelle aussi que la mesure de phase est linéaire sur une grande dynamique.

4.2.1 Système d'acquisition

Pour nos expériences nous avons besoin de mesurer des intensités d'impulsions, de contrôler des différences de chemins optiques (retards) et de mesurer et

analyser des profils de faisceaux.

Nous avons besoin de deux voies d'enregistrement de flux laser de référence (une pour l'infrarouge, la seconde pour la sonde à 615nm) et de deux voies pour les signaux. Le retard temporel entre les deux voies est réalisable avec une ligne à retard sur la voie sonde. Elle est constituée d'un jeu de miroirs en toit monté sur une platine de translation motorisée¹ dont la précision de déplacement est de $1\mu m$ soit $6fs$ ²

L'expérience étant installée dans une salle sans équipement de mesure particulier, il a fallu concevoir et réaliser un système de mesure complet. Je vais décrire brièvement ce système dans ses composantes: électronique et informatique.

4.2.1.1 Electronique

Les temps de réponse de l'électronique classique sont généralement de l'ordre de la nanoseconde. Il est donc impossible de mesurer avec un système électronique la forme temporelle d'une impulsion laser femtoseconde³. Nos systèmes de mesure intègrent l'ensemble de l'impulsion pour donner une intensité moyenne.

Nous utilisons des photodiodes "classiques" en générateur de courant pour récupérer les flux. Le photocourant est ensuite intégré et amplifié pour donner un signal en courant d'une durée de $2\mu s$. Ensuite, le signal est converti en tension directement dans le boîtier de la diode. Cette conversion directe permet de limiter le bruit lors du transport du signal jusqu'aux éléments suivants. Pour un signal d'amplitude maximum de 10 Volts le bruit après transport est de $2mV$.

Les quatre signaux issus des photodiodes sont traités dans un échantillonneur-bloqueur fabriqué en collaboration avec Gilles Darpentigny du groupe ELF au Laboratoire d'Optique Appliquée, qui a conçu la carte. Ce module sert à adapter le signal aux capacités de mesures de la carte d'acquisition que nous utilisons⁴.

1. La platine est une UT50-20 $1\mu m$, le moteur est un UE31PP avec encodeur et l'électronique est un rack 2500. L'ensemble provient de chez Micro-Controle Newport. Ce système a sa propre électronique de contrôle configurable. La communication avec le PC de commande se fait par l'intermédiaire d'une liaison GPIB.

2. Il faut tenir compte de l'allongement total du chemin optique soit un aller et retour du faisceau de $2 \times 1\mu m$.

3. Il faut des processus optiques instantanés à l'échelle de l'impulsion pour mesurer la durée d'une impulsion femtoseconde, par exemple, l'auto-corrélation du second ordre avec un cristal doubleur.

4. Carte PC-LPM-16 de National Instrument.

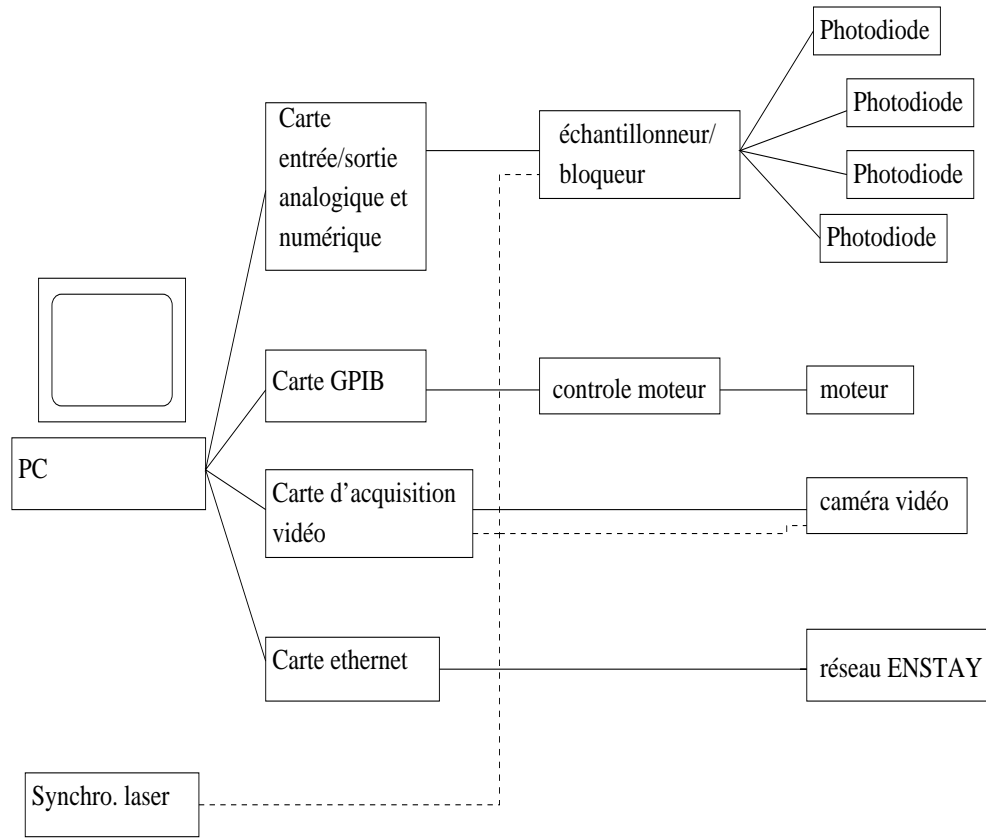


FIG. 4.2 –: *Synopsis du système d'acquisition.*

L'échantillonneur bloqueur est composé de trois sous-parties:

- Des amplificateurs tension-tension en entrée du système permettent d'ajuster le gain sur chaque voie et protègent les bloqueurs.
- Un signal TTL de synchronisation est récupéré sur l'électronique de déclenchement des flashes du laser Nd:Yag de l'amplificateur (voir la section 3.3). Un système à base de monostables permet de générer un délai ajustable pour actionner les bloqueurs ; il fabrique ensuite une série de quatre signaux d'horloge pour permettre à la carte d'acquisition de faire une acquisition séquentielle des quatre voies.
- La carte d'acquisition étant incapable de mesurer quatre voies simultanément⁵, il faut lui laisser les quelques dizaines de microsecondes nécessaires pour numériser les voies. Pour cela les bloqueurs figent les signaux à leurs maximum grâce au signal de synchronisation. Ce système marche en suiveur

⁵. Elle est composée d'un seul convertisseur analogique-numérique alimenté par une ligne à décalage analogique.

pendant la durée du signal de synchronisation et bloque sur le front descendant. Il faut donc que le signal de synchronisation ait une durée supérieure à $1\mu s$ (le temps de montée pleine échelle du bloqueur) et un front descendant parfaitement synchronisé avec le maximum de l'impulsion signal.

La carte d'acquisition reçoit ensuite les quatre signaux conditionnés et les convertit en niveau numérique de manière séquentielle grâce à l'horloge que nous avons fabriquée.

Le bruit du système complet est de un bit⁶ ; soit pour un convertisseur 11bits travaillant sur une plage 0-10Volts, un bruit résiduel de 10mV.

4.2.1.2 Acquisition vidéo

La caméra vidéo que nous utilisons comporte un obturateur électronique qui permet de choisir le temps d'intégration du flux. Une caméra se comporte comme un intégrateur de photocourant suivi d'un convertisseur courant-tension, comme le système de diodes de la section 4.2.1.1

Une seconde horloge doit être réalisée pour contrôler le déclenchement de la prise d'image avec la caméra vidéo. Il ne s'agit pas de recréer la trame du signal vidéo mais de synchroniser la prise d'image avec l'impulsion et de choisir toujours la même trame. En effet une caméra fait une prise d'image sur deux trames, la paire et l'impaire⁷. Pour cela il faut, à partir du signal de synchronisation du laser, générer un délai pour déclencher la prise d'image au moment de l'impulsion et ensuite déclencher la prise de la seconde trame de manière à ce qu'à l'impulsion suivante nous commençons la mesure sur la première trame.

4.2.1.3 Informatique

Dans le but d'automatiser l'ensemble de l'expérience les différents éléments sont tous reliés à un ordinateur de type PC muni d'un logiciel permettant le contrôle d'instruments et l'analyse des données.

Pour ces expériences il est indispensable de concevoir un logiciel de gestion du système adapté au cahier des charges des expériences et facilement modifiable pour tenir compte des inévitables besoins nouveaux qui apparaissent au cours du temps. Le langage de programmation **Labview** de *National Instrument* est bien adapté à la réalisation de tels logiciels.

6. le LSB (Less Significant Bit).

7. Les trames correspondent à des lignes horizontales de pixels. Les trames paires correspondent aux numéros de lignes paires et les trames impaires aux lignes impaires. Ce système permet d'enregistrer une demi image puis la seconde demi sans perte de qualité dans un délai suffisamment court pour que la fréquence des images soit supérieure à la limite de scintillement pour une vision oculaire.

Le programme que j'ai *dessiné* avec Labview⁸ devait répondre au cahier des charges dont les points principaux sont les suivants :

- Le logiciel permet de mesurer facilement les différents signaux de manière à faciliter le réglage de l'expérience.
- Le logiciel doit gérer l'ensemble du déroulement de l'expérience. Pour cela il doit suivre l'organigramme suivant:
 - Introduction des paramètres de l'expérience.
 - Mesure des états initiaux des différents signaux pour la normalisation du signal.
 - Positionnement de la ligne à retard sur le délai correspondant à la mesure.
 - Mesure du point expérimental tenant compte des différents contrôles et de la normalisation.
 - Déplacement vers le prochain point de mesure ou retour à la position initiale pour conclure l'expérience.
 - Enregistrement du résultat.
- Le logiciel doit permettre une analyse rapide du résultat de l'expérience de manière à valider celle-ci. Il doit aussi pouvoir enregistrer le résultat sous une forme utilisable pour des calculs ultérieurs et présentable dans un document.
- Chaque instrument doit être utilisable de manière autonome. Cela permet, par exemple, de tester la mesure de flux sur les diodes ou le déplacement du moteur indépendamment du reste. Cela permet aussi de fabriquer rapidement une nouvelle fonction pour un nouveau besoin.

Le programme est donc conçu en modules. Les modules fondamentaux correspondent aux instruments (la mesure de flux, le déplacement du moteur, l'acquisition d'une image), mais aussi à certaines opérations répétitives comme la normalisation du signal ou la sauvegarde dans un fichier du résultat. Ensuite, d'autres modules utilisant les modules fondamentaux font des opérations plus complexes, comme l'acquisition d'un point expérimental, une séquence de positionnement du moteur à l'origine ou la mesure et le calcul des conditions de mesure. Puis viennent les gros modules : ils s'appellent expérience, analyse, réglages ; ce sont ceux que l'utilisateur manipule.

8. Labview est un langage de programmation graphique, voilà pourquoi j'ai dessiné plutôt qu'écrit ce programme. En cela il se rapproche de la programmation orientée objet comme le C++ ou Java.

Cette structure de programme a permis une évolution continue du logiciel et son adaptation rapide à un second système expérimental utilisant des instruments et un traitement du signal légèrement différents. J'ai aussi travaillé à le rendre le plus compatible possible avec d'autres systèmes utilisés dans le laboratoire de manière à ce qu'il puisse bénéficier de l'évolution de l'instrumentation disponible dans le laboratoire et inversement, sans modifications importantes.

4.2.2 Normalisation du signal

Avec le système décrit précédemment, nous mesurons systématiquement, lors de nos expériences, les intensités des faisceaux pompe et sonde avant l'échantillon de manière à normaliser nos signaux et prévenir toute fluctuation du laser ; ce sont les signaux R_T et R_{IR} .

Nous mesurons aussi en plus du signal (noté S) l'intensité de la sonde transmise à travers l'échantillon (notée A) de manière à tenir compte de toute fluctuation induite sur le signal risquant d'altérer la mesure de phase.

Ces variations d'intensité sont de plusieurs sortes suivant l'expérience ; il peut s'agir d'absorption à deux photons, de variation de réflectivité induite ou de conversion partielle du champ test vers une autre longueur d'onde.

La normalisation du signal se fait en deux temps. Il s'agit d'abord de soustraire le fond constant, puis, de tenir compte des variations d'intensité du faisceau pompe.

Pour évaluer le fond en absence de signal, une première mesure est faite au temps négatif, lorsque la sonde traverse l'échantillon quelques centaines de femtosecondes avant la pompe⁹. Nous mesurons alors S^0 , R_T^0 , R_{IR}^0 et A^0 .

Ensuite pour chaque mesure nous calculons le signal S' affranchi du fond :

$$S' = \frac{S.A^0.R_T^0}{A.R_T} - S^0 \quad (4.1)$$

Pour ensuite s'affranchir des fluctuations du faisceau pompe, le signal est normalisé par rapport à l'intensité R_{IR} du faisceau pompe pour obtenir le signal normalisé final :

$$S_N = S' \cdot \frac{R_{IR}^0}{R_{IR}} \quad (4.2)$$

Les phénomènes que nous observons étant proportionnels à l'intensité de la pompe, cette normalisation peut sembler suffisante.

Pour être en mesure de déceler tout signal lié à une interaction quadratique en intensité avec la pompe, une sélection des tirs laser est effectuée : les flux mesurés

9. Cela sous-entend que la durée des phénomènes observés doit être inférieure au taux de répétition du laser (0.1s).

sur les voies de référence doivent être compris dans des fourchettes les plus faibles possibles. Cela permet expérimentalement de sélectionner des tirs lasers dont les fluctuations d'intensité sont inférieures à 10% de la valeur moyenne.

Chaque point expérimental est une moyenne d'au moins 20 tirs laser. La normalisation 4.2 est appliquée sur chaque tir avant le calcul de la moyenne.

4.3 Phonons optiques

Les expériences de mesure des phonons optiques ont deux objectifs ; il s'agit, dans un premier temps, de montrer que l'expérience de lentille de Kerr permet de visualiser des phonons optiques et qu'elle a une sensibilité suffisante pour mesurer leur dynamique temporelle.

Ensuite, nous avons vérifié expérimentalement les calculs sur le vecteur d'onde de la section 2.2.

En considérant l'accord de phase entre les quatre ondes de l'interaction, nous pouvons évaluer l'efficacité d'une mesure de phonon, tout comme l'accord de phase qui intervient dans le gain paramétrique de la section 3.2.4.6. Il apparaît, sur la table 2.3 résumant les calculs sur les vecteurs d'onde, que les expériences de lentille de Kerr sont adaptées à la mesure de coefficients symétriques de phonons.

Nous avons donc séparé ce chapitre en une première partie sur la mesure de coefficients diagonaux et une seconde sur la mesure de coefficients non diagonaux.

La première partie nous permettra de valider l'expérience de lentille de Kerr pour la mesure de phonons optiques et de faire quelques considérations sur les vecteurs d'onde.

La seconde partie montre les limites de l'expérience de mesure de lentille de Kerr pour la mesure de phonons et confirme complètement les calculs de vecteur d'onde.

4.3.1 Coefficients diagonaux

Pour montrer qu'une expérience de mesure de lentille de Kerr permet de mesurer des phonons optiques, il faut choisir un cristal connu ayant un mode de phonon symétrique connu, dont la fréquence est comprise dans la largeur spectrale de l'impulsion laser, soit typiquement des fréquences comprises entre 0 et 250cm^{-1} [36].

Nous avons choisi le cristal de KNbO_3 et un de ses modes symétriques : le mode A_1 .

Dany P. Kien [36] a mesuré la dispersion polariton des modes A_1 de plus basse énergie avec des expériences temporelles de type réseau induit (voir la section 1.4.1 pour le principe de l'expérience).

La figure 4.3 montre ses mesures et les courbes théoriques. De plus, la dispersion polariton des modes A_1 a été obtenue en spectroscopie Raman, confirmant par des mesures en fréquences les mesures temporelles[50].

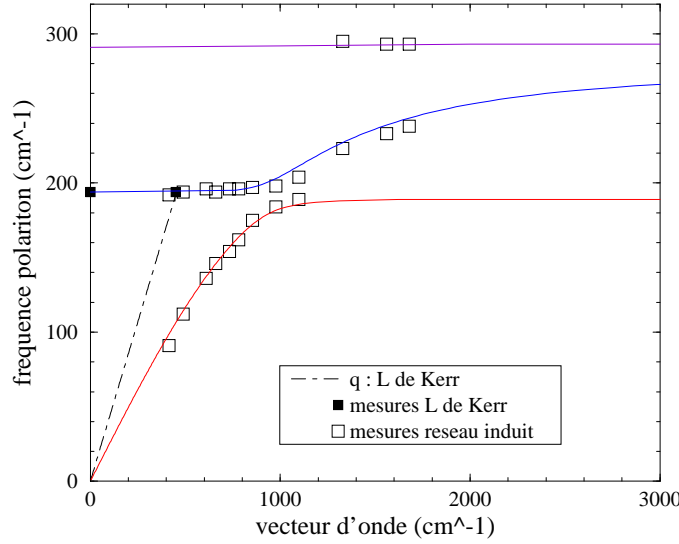


FIG. 4.3 –: *Dispersion polariton des trois premiers modes A_1 de KNbO_3 avec les mesures expérimentales obtenues avec des expériences de réseau induit et de lentille de Kerr*

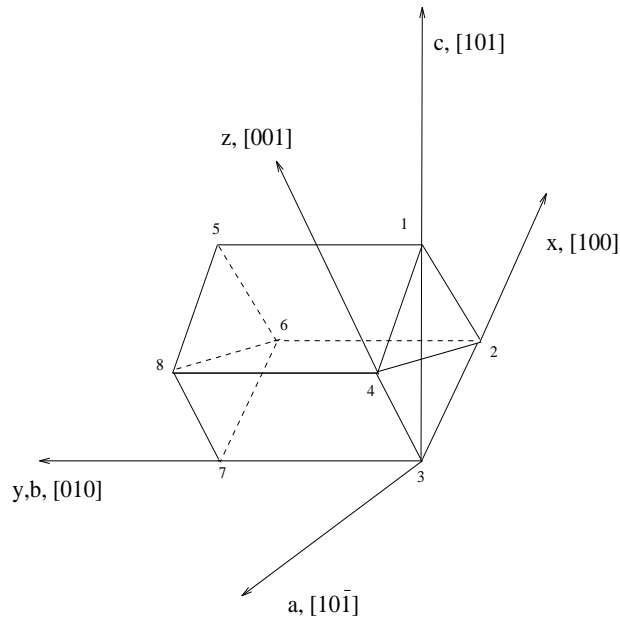
4.3.1.1 Validation de l'expérience

Toutes les expériences ont été faites avec un cristal de KNbO_3 de $300\mu\text{m}$ d'épaisseur taillé de manière à ce que sa face d'entrée soit parallèle au plan cristallin (b,c) (Voir le schéma des axes cristallographiques de KNbO_3 sur la figure 4.4).

Pour induire et mesurer les modes A_1 , nous avons polarisé parallèlement les faisceaux pompe et test suivant l'axe y du cristal qui est parallèle à l'axe b .

La figure 4.5 montre le résultat obtenu avec des faisceaux pompe et sonde à 615nm . Nous voyons que ce signal est composé d'une réponse électronique instantanée¹⁰ pour un délai nul entre pompe et test suivi d'une oscillation.

10. La réponse électronique correspond à la modification non linéaire du nuage électronique,

FIG. 4.4 –: *Axes principaux de KNbO_3*

La transformée de Fourier de celle-ci donne une fréquence de 194cm^{-1} . L'incertitude sur la détermination de la fréquence est inférieure à 1cm^{-1} . Cette fréquence correspond au second mode A_1 visible sur la figure 4.3 pour un vecteur d'onde compris entre 0 et 800cm^{-1} ; nous préciserons la valeur exacte du vecteur d'onde en section 4.3.1.2.

Nous montrons par cette expérience que le système expérimental de mesure de lentille de Kerr permet de mesurer la dynamique temporelle de phonons optiques avec une sensibilité au moins égale à celle d'une expérience de réseau induit [25].

Tout en gardant la longueur d'onde du faisceau sonde à 615nm , nous avons fait varier la longueur d'onde de pompe. La figure 4.21 page 118, donne en exemple le résultat obtenu avec des pompes dans l'infrarouge à des longueurs d'onde de 790nm , 840nm et 934nm . Sur la transformée de Fourier de ces mesures apparaît toujours le mode A_1 à 194cm^{-1} .

Nous vérifions alors que dans une configuration de corrélation croisée, nous mesurons toujours des phonons optiques.

Il est apparent sur les mesures que le phonon n'est pas le seul phénomène observé aux temps longs; en plus de l'oscillation du phonon une modulation de

cela permet de mesurer l'auto corrélation de l'impulsion. Nous en déduisons la durée de l'impulsion qui est pour cet exemple de 90fs . Cette technique de mesure de la durée d'une impulsion est équivalente à une auto corrélation utilisant la génération de seconde harmonique.

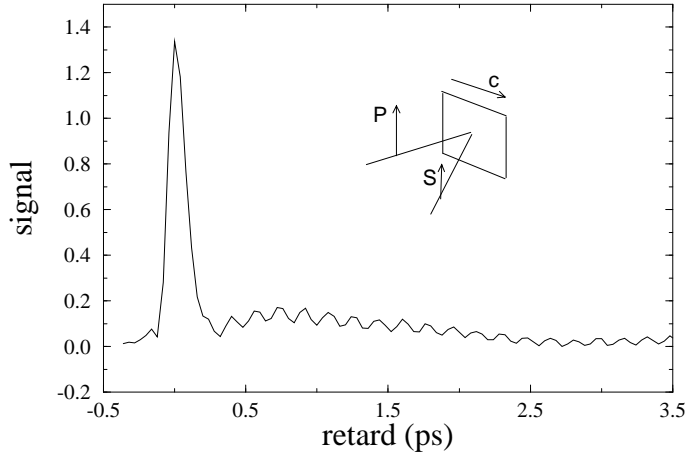


FIG. 4.5 –: *Second mode A_1 de KNbO_3 obtenu lors d'une expérience de lentille de Kerr avec des faisceaux pompe et sonde à 615nm*

plus basse fréquence est présente.

Nous avons remarqué lors de nos expériences que la transmission du faisceau sonde varie à la même fréquence que la variation d'indice induite par le phonon. La figure 4.6 montre ce phénomène, qui apparaît aussi sur des mesures faites sur le faisceau réfléchi.

Il apparaît que la modulation basse fréquence disparaît du signal obtenu par transmission. Il s'agit donc d'un effet de volume dans l'échantillon.

Nous verrons en section 4.4.2 qu'il s'agit d'un effet de propagation dans l'échantillon lié à des phénomènes non linéaires en cascade.

Nous avons ensuite cherché un matériau capable de montrer la limite de sensibilité de l'expérience de lentille de Kerr. Pour cela il faut trouver un mode de phonon ayant une force d'oscillateur faible et qui soit clairement identifiable.

Nous avons choisi le cristal de LiIO_3 qui fait partie de la famille des perovskites.

En considérant l'ensemble des modes Raman de LiIO_3 , ayant des fréquences inférieures à 250cm^{-1} et des coefficients symétriques non nuls, nous ne pourrions mesurer que les premiers modes A_1 et E_2 respectivement à 156cm^{-1} et 92cm^{-1} en polarisant les faisceaux pompe et sonde suivant les axes x et y ou uniquement le mode A_1 en polarisant les faisceaux suivant l'axe z [71].

Leurs tenseurs de polarisabilité Raman s'écrivent:

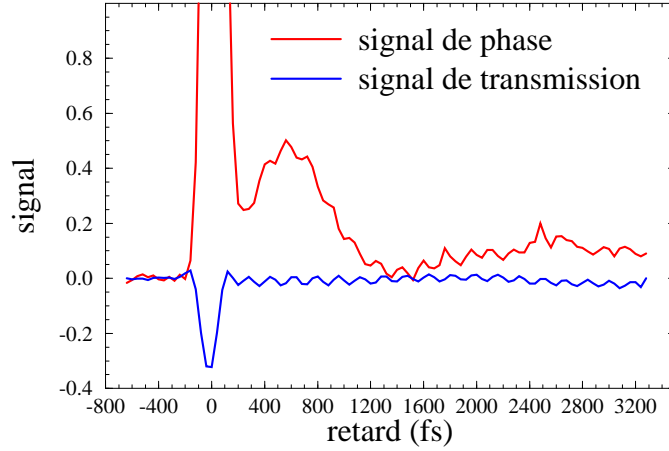


FIG. 4.6 –: *Second mode A1 de KNbO_3 obtenu lors d’une expérience de lentille de Kerr avec des faisceaux pompe et sonde à 615nm ; différence entre signal obtenu par filtrage spatial et signal obtenu par mesure de la variation de transmission du cristal*

$$E_2 = \begin{bmatrix} e & -f & . \\ -f & -e & . \\ . & . & . \end{bmatrix} \quad (4.3)$$

$$A(z) = \begin{bmatrix} a & . & . \\ . & a & . \\ . & . & b \end{bmatrix} \quad (4.4)$$

Nous disposons d’un cristal de LiIO_3 de $500\mu\text{m}$ d’épaisseur taillé de manière à avoir le plan (y,z) parallèle à la face d’entrée. Nous pouvons donc induire des modes symétriques suivant les directions y et z .

Dans le cristal de LiIO_3 , le premier mode E_2 est particulièrement intéressant. C’est un mode non polaire [72], il n’est donc pas sujet à la dispersion polariton. Quel que soit son vecteur d’onde sa fréquence reste égale à 92cm^{-1} .

Nous avons fait une expérience de lentille induite avec 615nm de longueur d’onde pour la pompe et le test. En plaçant le détecteur de manière à ce qu’il ait une sensibilité maximum (voir le chapitre 1.3.5), nous avons obtenu le résultat présenté sur la figure 4.7. De façon visible il n’y a qu’un seul oscillateur, et la transformée de Fourier du signal confirme la présence d’une raie unique à 92cm^{-1} correspondant au premier mode E_2 .

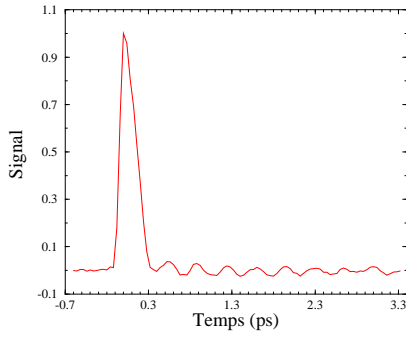


FIG. 4.7 –: *Mesure du mode E_2 de LiIO_3 à 614nm comprenant la réponse électronique instantanée et l'oscillation du phonon à une fréquence de 92cm^{-1} .*

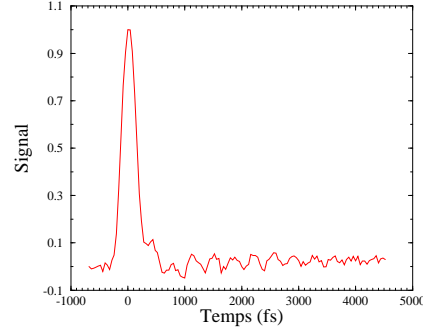


FIG. 4.8 –: *Mesure du mode E_2 de LiIO_3 à 960nm, la fréquence phonon est toujours de 92cm^{-1}*

Avant d'analyser la signification physique de ce résultat, il faut remarquer qu'il montre qu'il s'agit bien d'une mesure linéaire de phase. L'oscillation enregistrée correspondant à une sinusoïde oscillant de part et d'autre d'une ligne de base correspondant au signal nul. Cela montre que le phonon est le seul phénomène mesuré au temps long, contrairement au résultat obtenu avec KNbO_3 montré en figure 4.5.

Une expérience polarisée suivant z a permis d'observer une très faible oscillation (figure 4.9), visible sur la transformée de Fourier (figure 4.10); la fréquence de 156cm^{-1} mesurée correspond au premier mode A_1 de LiIO_3 .

Cette expérience met en évidence la sélection des modes suivant la polarisation des faisceaux pompe et sonde. On peut aussi remarquer la présence d'une modulation basse fréquence liée à une cascade de $\chi^{(2)}$ pour cette configuration de polarisation.

Nous considérons cette fréquence, presque invisible à l'œil, comme un exemple du plus petit signal enregistrable avec une expérience de lentille de Kerr. Pour évaluer la sensibilité liée à la mesure de ce mode, nous avons comparé l'amplitude de la réponse obtenue avec celle obtenue avec un verre.

La précision de cette comparaison est faible; les incertitudes résident dans la valeur du n_2 du verre choisi et dans la comparaison des expériences. En effet la réponse du verre est du même ordre de grandeur que la réponse électronique de LiIO_3 , mais il y a un facteur 300 entre l'amplitude du phonon et l'amplitude de la réponse électronique de LiIO_3 , ce qui correspond à une valeur en limite de linéarité de notre détecteur.

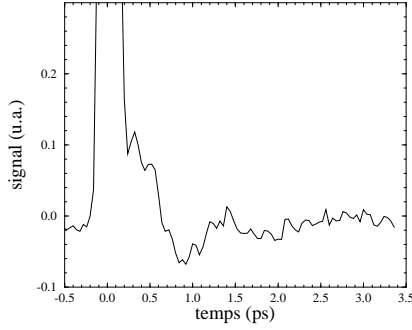


FIG. 4.9 –: *Mesure du mode A_1 de LiIO_3 , la réponse électronique a été tronquée pour montrer la fréquence de 156cm^{-1} du mode A_1 difficilement visible, et une oscillation basse fréquence liée à du $\chi^{(2)}$ en cascade*

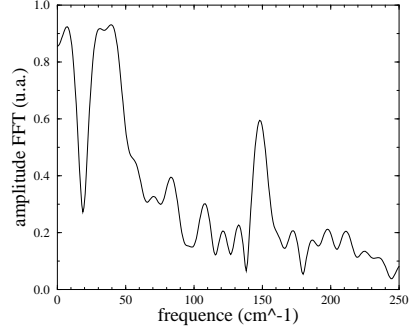


FIG. 4.10 –: *Transformée de Fourier rapide de la mesure de la figure 4.9, montrant la fréquence à 156cm^{-1} du premier mode A_1 de LiIO_3*

Du fait d'un léger défaut de linéarité, la réponse électronique a une amplitude mesurée inférieure à celle que l'on pourrait mesurer avec un système strictement linéaire (voir les dynamiques du système de mesure résumées dans la table 1.2). Nous ne pouvons donc que minorer la sensibilité de notre système. *La sensibilité de la mesure de phase pour la mesure du premier mode A_1 de LiIO_3 est supérieure ou égale à $\lambda/500$ ¹¹.*

Nous avons fait une seconde expérience avec les faisceaux pompe et sonde polarisés suivant l'axe y de LiIO_3 , mais avec une longueur d'onde de pompe de 960nm ¹². Cette mesure (figure 4.8) donne encore une oscillation à 92cm^{-1} , identique à celle de la figure 4.7. *La sensibilité de la mesure en modulation croisée est équivalente à celle en automodulation.*

4.3.1.2 Le vecteur d'onde

Nous avons cherché à confirmer par l'expérience les hypothèses sur la définition des vecteurs d'onde du chapitre 2.2. Il s'agit pour cela de séparer par l'expérience les configurations d'induction et de mesure impulsionnelle (ISRS) et CARS.

11. Cette grande sensibilité et la linéarité de la mesure nous ont permis de faire des mesures comparatives entre différents matériaux. En particulier, nous avons comparé les n_2 de verres spéciaux (Herasil et Suprasil) avec celui du cristal de MgF_2 qui est connu pour avoir une absorption non linéaire très faible, en vue de l'achat par le laboratoire de hublots pour des applications lasers dans l'ultra violet. Le n_2 de l'Herasil est 1.65 fois plus fort que celui de MgF_2 et celui du Suprasil est 2.1 fois plus fort.

12. Cette longueur d'onde correspond au maximum en longueur d'onde de la plage d'accord de notre amplificateur paramétrique optique pour conserver une énergie supérieure à $1\mu\text{J}$.

Nous avons étudié deux protocoles expérimentaux pour séparer les cas CARS et ISRS : l'accord de phase du mélange à quatre ondes, qui n'est pas réalisé de la même façon pour les expériences ISRS et CARS, et la dispersion de la fréquence polariton en fonction du vecteur d'onde.

Considérons d'abord l'accord de phase. Il apparaît sur la table 2.3 que l'accord de phase entre les quatre ondes de l'interaction est toujours réalisé pour une expérience à une seule longueur d'onde alors que pour une expérience à deux longueurs d'onde, il apparaît un désaccord de phase dans le cas CARS. Pour les expériences présentées ci dessus, le désaccord de phase est de $\sim 60\text{cm}^{-1}$ pour KNbO_3 et de $\sim 50\text{cm}^{-1}$ pour LiIO_3 . Ce désaccord est lié à la dispersion chromatique dans les cristaux.

Une expérience utilisant la même longueur d'onde pour la pompe et la sonde ne permet pas de séparer sur nos mesures la contribution au mode Raman liée à une induction impulsionnelle, de celle liée à une configuration CARS. Par contre, nous mesurons toujours le phonon, lors de nos expériences sur les cristaux de LiIO_3 et KNbO_3 de la section 4.3.1.1, avec des impulsions de pompe dans l'infrarouge ; cela signifie qu'il existe bien une induction impulsionnelle et que nous pouvons la mesurer.

En considérant l'accord de phase, nous ne pouvons pas isoler une contribution purement CARS à la mesure de phonons symétriques. C'est pourquoi nous allons maintenant chercher à discriminer en fréquences les contributions ISRS et CARS pour les phonons symétriques.

Le mode E_2 de LiIO_3 que nous avons mesuré n'est pas polaire ; il ne présente donc pas de dispersion polariton, sa fréquence étant indépendante de son vecteur d'onde. Il ne nous intéresse pas pour une expérience de discrimination en fréquence.

Par contre, les modes A_1 de KNbO_3 que nous mesurons sont polaires. Le vecteur d'onde pour une expérience de mesure de lentille de Kerr est nul dans le cas ISRS et vaut 470cm^{-1} pour le phonon ayant 194cm^{-1} de fréquence. Les points expérimentaux obtenus sont reportés sur la figure 4.3. Nous mesurons le second phonon du mode A_1 pour des valeurs de vecteur d'onde pour lesquelles le phonon n'est pas sujet à une dispersion polariton.

La courbe de dispersion du vecteur d'onde fonction de la fréquence du phonon de la figure 4.3, montre que nos mesures utilisant la technique de la lentille de Kerr seront toujours en dehors de la dispersion polariton.

Malheureusement, ce qui est vrai pour le mode A_1 de KNbO_3 l'est aussi pour tous les modes que nous avons essayés. La raison en est simple : la tangente à la courbe de dispersion polariton pour des vecteurs d'onde autour de zéro, correspond à la dispersion du vecteur d'onde de photons ayant des fréquences de quelques dizaines de cm^{-1} soit des longueurs d'onde dans l'infrarouge lointain

(autour de la centaine de micromètres), alors que notre vecteur d'onde induit est fonction du vecteur d'onde d'une impulsion laser dans le visible ou le proche infrarouge. Il faut donc essayer des configurations expérimentales différentes.

Une expérience de type réseaux induits permet de placer le vecteur d'onde dans la zone de dispersion polariton en ajoutant une composante perpendiculaire au vecteur d'onde induit.

Les mesures présentées sur la figure 4.3 correspondent à des mesures obtenues par réseau induit. Le vecteur d'onde correspondant à une meilleure adéquation des mesures avec la théorie correspond à une configuration impulsionnelle (ISRS)[53].

Pour expliquer l'absence de signal dans la configuration CARS, il faut considérer les conditions géométriques de l'expérience réseau induit. Le faisceau sonde entre dans l'échantillon avec un angle tel qu'il se trouve à l'angle de diffraction de Bragg pour un réseau induit avec le vecteur d'onde correspondant à l'induction impulsionnelle. L'efficacité théorique de la diffraction de Bragg est de 100% et décroît ensuite rapidement dès que l'angle change. L'écart angulaire entre les angles de Bragg pour les inductions impulsionnelle et CARS, est de ~ 0.15 deg pour le phonon A_1 de KNbO_3 pour un angle de 2 deg entre les faisceaux de pompe. Cette différence fait la sélection entre les deux processus pour la mesure, car lorsque l'un a 100% d'efficacité théorique de diffraction le second n'en a plus que $\sim 2\%$. Cette écart angulaire est établi en considérant que la partie centrale du spectre de la sonde est diffracté sur le réseau de Bragg. Pour le vecteur d'onde CARS, si l'angle est inchangé, les fréquences dans l'approximation de Bragg se trouvent sur un bord du spectre et l'intensité mesurable est alors beaucoup plus faible.

D'autres groupes de recherche ont mesuré des coefficients symétriques de phonons optiques avec des techniques impulsionnelles ; ils ont tous fait leurs expériences en dehors d'une zone de dispersion polariton[42, 73, 74] ou dans une configuration de réseau induit[41, 75, 76]. Ils n'ont donc pas eu de problème sur la détermination du vecteur d'onde.

Les coefficients symétriques des phonons ne permettent pas de mettre clairement en évidence la présence de deux comportements différents pour l'induction et la mesure des phonons optiques avec des impulsions femtosecondes. Nous avons uniquement justifié la présence d'une configuration de vecteur d'onde impulsionnelle. C'est pourquoi nous allons maintenant aborder la mesure de coefficients non diagonaux.

4.3.2 Coefficients non diagonaux

Les expériences présentées dans cette section ont été faites avec la technique des réseaux induits, et avec la configuration de porte Kerr qui est dédiée à la mesure de coefficients Raman non diagonaux.

Une expérience de mesure de lentille de Kerr ne permet pas de mesurer des phonons non symétriques. Pour le comprendre, il faut se rappeler que le signal de l'expérience est composé d'un champ constant modulé par la non linéarité. Dans la direction de polarisation du signal ce champ n'existe pas car la direction de polarisation du champ émis par un phonon non symétrique est orthogonale à celle de la sonde (voir la section 2.1.3).

Je vais présenter maintenant des expériences auxquelles je n'ai participé qu'indirectement, mais qui apportent une confirmation sans équivoque aux calculs sur les vecteurs d'onde.

Les expériences ont été faites sur le mode non symétrique E de PbTiO_3 dont le tenseur Raman s'écrit :

$$E(x, y) = \begin{bmatrix} . & . & b \\ . & . & c \\ b & c & . \end{bmatrix} \quad (4.5)$$

et en particulier sur le coefficient c de ce tenseur correspondant à des polarisations des champs de l'interaction dans le plan (y, z) .

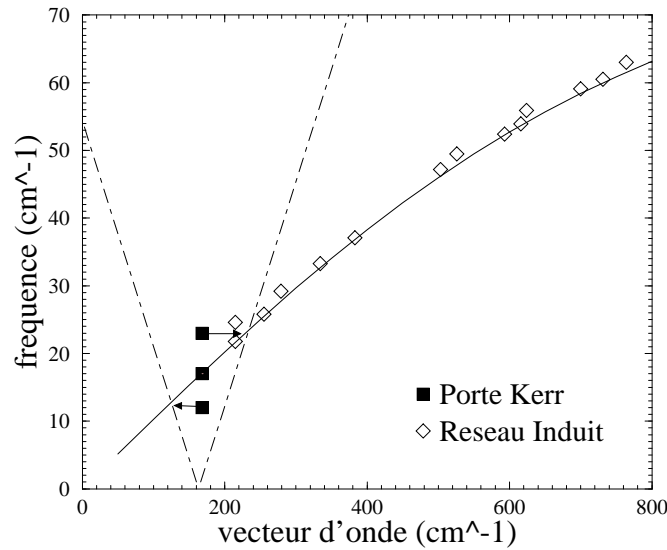


FIG. 4.11 —: Résultats expérimentaux obtenus sur la dispersion polariton de mode E de PbTiO_3 par deux méthodes: les réseaux induits et la porte Kerr. En pointillé, les valeurs calculées du vecteur d'onde en fonction de la fréquence du phonon.

La figure 4.11 montre une partie de la courbe de dispersion polariton du mode non symétrique E de PbTiO_3 obtenue par une technique de réseau induit [77].

Les réseaux induits ont permis d'obtenir l'ensemble des dispersions polariton des deux premiers modes E de PbTiO_3 pour des valeurs de vecteurs d'onde supérieures ou égales à 200cm^{-1} . Pour diminuer la valeur du vecteur d'onde et compléter les courbes de dispersion, des expériences de type porte de Kerr ont été faites sur ce matériau (Voir les sections 1.4.1 et 1.4.2 sur ces techniques de mesure).

Une mesure en porte Kerr homodyne a donné une fréquence polariton de 17cm^{-1} pour une valeur du vecteur d'onde de 168cm^{-1} correspondant à une configuration impulsionnelle qui se trouve sur la courbe de dispersion.

La même expérience de porte Kerr faite en détection hétérodyne, par mélange du signal avec un fond continu pour récupérer un signal linéaire, donne deux fréquences polaritons à 12cm^{-1} et 23cm^{-1} qui se placent sur la courbe de dispersion si nous considérons que la configuration de mesure est de type CARS.

Ces résultats, visibles sur la figure 4.11, montrent que suivant le type de détection de la porte Kerr, homodyne ou hétérodyne, nous pouvons sélectionner soit le processus ISRS soit le processus CARS. *Nous avons donc réussi à isoler expérimentalement les deux processus, montrant ainsi qu'ils sont bien induits tous les deux dans notre configuration expérimentale.*

Pour comprendre pourquoi ces expériences séparent les deux processus, il faut faire des hypothèses sur les échanges d'énergie entre les faisceaux de l'interaction et le phonon. Des expériences sont en cours, utilisant des analyses spectrales du signal pour expliquer cette propriété.

4.3.3 Conclusion

Nous avons montré que nous étions capables de mesurer des phonons optiques, ayant des coefficients symétriques dans leur tenseur Raman, avec une expérience de mesure de lentille de Kerr résolue en temps [25]. La sensibilité au déphasage de ce système a été évaluée à environ $\lambda/500$.

Les expériences pour déterminer les processus d'induction et de lecture des phonons symétriques ont confirmé l'hypothèse d'un processus impulsionnel ou ISRS, que ce soit en réseau induit ou par une expérience de mesure de lentille de Kerr. Une expérience de type porte Kerr sur le mode non symétrique E de PbTiO_3 , s'appuyant sur les résultats d'une série d'expériences en réseaux induits, a permis de séparer les contributions CARS et ISRS suivant que la détection est homodyne ou hétérodyne [78].

4.4 Non-linéarités en cascade

Nos expériences de modulations de phase auto induite ou croisée (SPM et XPM) nous ont permis d'observer des variations de phase plus importantes que celles liées aux phonons que nous voulions mesurer.

Par continuité¹³ avec les mesures de déphasage induit par des phonons optiques, nous nous sommes intéressés aux effets de phase liés au $\chi^{(2)}$ en cascade et en particulier à la modulation de phase croisée liée au mélange de deux longueurs d'onde différentes. Ce chapitre présente des mesures de dynamiques temporelles de ces modulations de phase en cascade [79].

4.4.1 Cascade de $\chi^{(2)}$ dans β -BBO

La cascade de $\chi^{(2)}$ est présente dans tous les processus de conversion de fréquence. Nous avons mesuré la dynamique temporelle de la phase induite par ces cascades sur les ondes fondamentales, en régime femtoseconde. Etudier la phase d'une impulsion femtoseconde est important, car sa variation est liée au spectre de l'impulsion.

La conversion de fréquence est de plus en plus employée pour réaliser des lasers dans le visible, le proche ultra violet et l'infrarouge. Pour cela sont utilisés communément les amplificateurs paramétriques (utilisant la soustraction de fréquences), les doubleurs et additionneurs de fréquences. Le doublage est aussi largement utilisé dans les dispositifs de caractérisation d'impulsions courtes. Certains espèrent aussi utiliser les fortes non-linéarités induites par la cascade de $\chi^{(2)}$ dans ce style de dispositifs [80].

La configuration généralement adoptée correspond à un champ à la longueur d'onde fondamentale de forte énergie, combiné avec d'autres à différentes longueurs d'onde d'énergie plus faible.

Nous avons vu, au chapitre 3, que le cristal de β -BBO est non centrosymétrique. Il est un excellent doubleur et, pour nous, un système de référence pour étudier les effets du second ordre en cascade.

Cette partie expérimentale montre d'abord les mesures faites sur le cas dégénéré du doublage de fréquence, puis sur la somme de fréquence. Ensuite nous verrons les conséquences sur le chirp des impulsions et comparerons la variation de phase induite avec celle de l'effet Kerr.

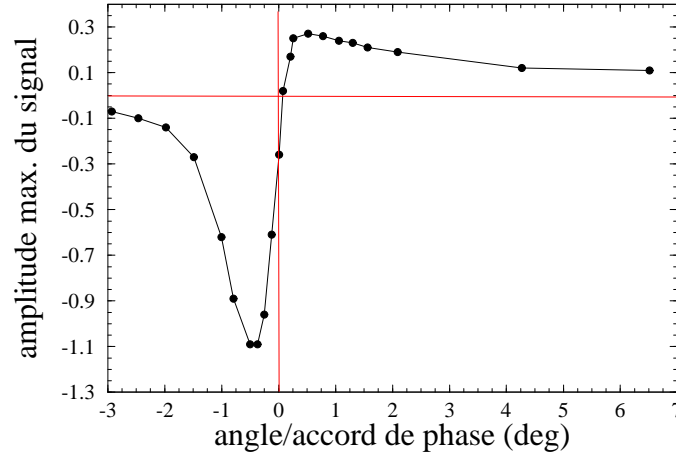


FIG. 4.12 –: *Dispersion angulaire de la variation de phase induite autour de l'accord de phase pour le doublage*

4.4.1.1 Doublage et recombinaison de fréquences

Il s'agit de mesurer la dynamique temporelle liée au doublage dont l'importance, intégrée dans le temps, a été mise en évidence dans plusieurs cristaux doubleurs. En effet, la variation de phase est mesurable sans résolution temporelle avec une expérience de type Z-scan [56, 81]. Pour mesurer la dynamique temporelle de l'effet il faut introduire une sonde. L'expérience de mesure de lentille de Kerr résolue en temps est adaptée à de telles mesures.

Nous nous intéressons à l'auto modulation de phase du faisceau pompe induite lors d'une cascade liée au doublage du $615nm$ en $307.5nm$, suivie de sa recombinaison avec le fondamental pour revenir à $615nm$.

Pour simuler le doublage de fréquence avec notre code, nous pouvons poser $\Psi_2 = \Psi_1$, ce qui revient à supprimer l'équation 2.47 de propagation de Ψ_2 . La sonde ne participant pas à l'interaction, elle n'est plus couplée aux autres ondes. Elle ne permet donc pas de mesurer la variation de phase du champ pompe. Pour réintroduire ce couplage sans modifier la réponse en phase sur Ψ_1 , il faut transformer le doublage de la pompe Ψ_1 en une somme pompe sonde avec la pompe et la sonde à la même longueur d'onde ($615nm$).

Il apparaît alors un problème : le faisceau sonde participe au doublage de fréquence alors qu'il est déplacé continûment en temps par rapport au faisceau

13. Les effets en cascade, responsables d'une variation d'indice, sont naturellement observés sur les perovskites et les autres produits étudiés ici : ce sont des cristaux non centrosymétriques.

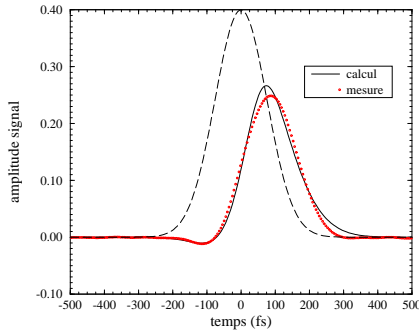


FIG. 4.13 –: Cascade de $\chi^{(2)}$ autour de l'accord de phase du doublage, phase de la sonde pour un décalage angulaire de $+0.5$ deg

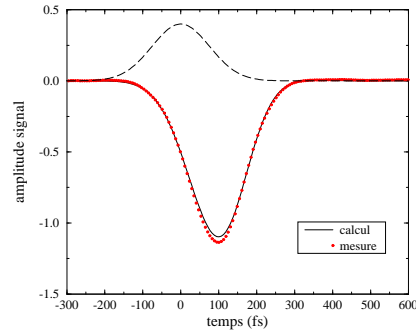


FIG. 4.14 –: Cascade de $\chi^{(2)}$ autour de l'accord de phase du doublage, phase de la sonde pour un décalage angulaire de -0.5 deg

pompe au cours de la mesure.

Pour vérifier qu'il s'agit d'un effet principalement lié à la pompe et à son profil temporel, nous avons utilisé une intensité de sonde 10 fois plus faible que l'intensité de pompe. Les calculs de la section 2.3.1 nous ont permis de montrer que dans ces conditions la dynamique temporelle est uniquement liée au profil temporel du champ pompe. Le calcul donne le même résultat avec ou sans l'introduction du champ sonde, mais à la différence fondamentale près que, quand le champ sonde est présent, il voit sa phase modulée par le phénomène en cascade.

Cette condition de champ sonde faible est visible dans les polarisations $P_1^{(2)}$ et $P_2^{(2)}$ décrites par les équations 2.49 et 2.50. Si $\Psi_1 = \Psi_2$ nous sommes dans une configuration de doublage et les équations de propagation 2.46 et 2.47 sont équivalentes. Par contre, si $\Psi_1 \gg \Psi_2$, $P_2^{(2)}$ est identique à la contribution sur $P_1^{(2)}$ de la configuration précédente; nous pouvons alors mesurer sur le faisceau sonde ce qui se serait passé sur le faisceau pompe seul¹⁴.

Les figures 4.13 et 4.14 montrent les extrema du phénomène. Nous remarquons qu'il y a une dissymétrie dans les amplitudes en faveur de la variation de phase positive¹⁵. Cette différence est sûrement liée à des problèmes de recompression d'impulsion et est discutée plus en détail dans la section 4.4.1.3 sur le chirp.

14. Il faut remarquer que grâce à l'angle entre les faisceaux l'équation 2.49 donnant $P_1^{(2)}$ ne peut pas avoir de terme supplémentaire de la forme : $i \frac{\omega_1}{n_{1,c}} d_{eff} \Psi_1^* \Psi_3 \frac{\sin(\Delta k z)}{\Delta k z} e^{i \Delta k z}$. En effet, il n'y a pas de $\Delta k = 0$ possible à cause de la configuration non colinéaire de l'accord de phase.

15. Le signal enregistré avec le détecteur de phase utilisant un trou de filtrage central inverse le signe de la variation de phase dans ces conditions expérimentales (échantillon ayant un $n_2 > 0$ placé après le point focal du faisceau sonde).

Pour comparer nos mesures avec celles, non résolues en temps, obtenues par Z-scan [56, 81] et avec nos calculs, nous avons tracé la figure 4.12 qui reporte les maxima des variations de phase observés pour chaque angle de mesure. Nous retrouvons cette forme classique de la variation de phase liée à la cascade : le déphasage change de signe quand le désaccord de phase change de signe. Si les simulations numériques ont pu décrire les formes temporelles des déphasages induits, elles décrivent mal cette courbe. Le calcul donne en effet une dispersion identique avec un maximum d'un côté et un minimum de l'autre, mais l'écart de 1 degré entre les deux extrema mesuré est réduit d'un ordre de grandeur avec le calcul. Cela peut être lié au fait que le calcul suppose des ondes infiniment planes, de divergence nulle et monochromatiques alors que l'expérience montre que du fait de la grande largeur spectrale des impulsions (voir le chapitre 3), et sûrement aussi de la divergence, le doublage reste efficace sur une plage angulaire importante.

4.4.1.2 Somme et recombinaison de fréquences

Le doublage de fréquence est un cas dégénéré de la somme de fréquence ; nous allons maintenant considérer le cas général.

Disposant de deux longueurs d'onde différentes, nous avons mesuré la variation de phase induite par cascade lors de la somme entre le laser à $615nm$ et le faisceau issu de l'amplificateur paramétrique optique réglé à $810nm$ de longueur d'onde centrale¹⁶.

Comme en section 4.4.1.1 pour le doublage, la sonde à $615nm$ est faible par rapport à la pompe. Nous avons vérifié par le calcul que, pour un rapport d'intensité entre la pompe et la sonde supérieur à dix, la variation de phase est identique à celle liée à l'interaction entre deux impulsions de durées identiques et égales à celle de la pompe arrivant en même temps sur le cristal non linéaire.

Nous pouvons alors observer tous les effets temporels sur la phase des impulsions liés aux différences de vitesse de groupe entre les trois champs.

Comme pour le cas précédent les mesures ont été faites en fonction du décalage angulaire avec l'angle d'accord de phase pour la somme de fréquence.

Du fait que nous avons maintenant trois, et non plus deux, vitesses de groupe différentes pour nos impulsions, le signal de phase mesuré est beaucoup plus perturbé que celui du doublage. Comme le montre les figures 4.15 et 4.16 la pseudo période de la modulation est plus longue, et dépasse la durée de l'impulsion. La modulation *utile* de la phase se trouve autour du temps zéro. On remarque alors

16. Quelques expériences ont été menées à d'autres longueurs d'onde pour vérifier des résultats obtenus à $810nm$.

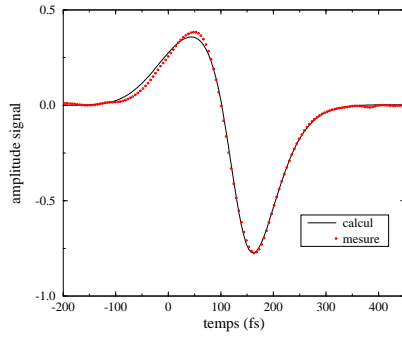


FIG. 4.15 –: Cascade de $\chi^{(2)}$ associée à la somme de fréquence, pour un désaccord de phase proche de zéro ($\Delta\theta < 0.05$ deg)

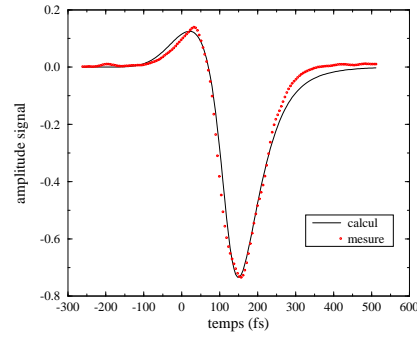


FIG. 4.16 –: Cascade de $\chi^{(2)}$ associée à la somme de fréquence pour un désaccord de phase important ($\Delta\theta \sim -1$ deg)

que le déphasage a une dépendance temporelle non linéaire qui ne peut qu'induire un chirp tout autant non linéaire.

4.4.1.3 Modulation de phase et chirp

A une variation de phase dans le temps est associée une fréquence instantanée telle que:

$$\Delta\omega = \frac{\delta\Phi}{\delta t} \propto -\frac{\delta I_{\text{instantané}}}{\delta t} \text{ pour } n_2 > 0 \quad (4.6)$$

Une impulsion optique femtoseconde est un paquet d'ondes ayant une largeur spectrale de l'ordre de la dizaine de nanomètres. Toute modulation de phase suivant la forme temporelle de l'amplitude de l'impulsion va créer, de par la relation 4.6, un décalage vers les grandes longueurs d'onde du spectre sur le front montant de l'impulsion et un décalage vers les courtes longueurs d'onde pour le front descendant, ou le contraire. Ce phénomène de décalage temporel du spectre est appelé gazouillis en acoustique; en optique nous préférons utiliser le terme anglais moins poétique de *chirp*.

Un chirp classique (figure 4.17), dû à la modulation de phase induite par un $\chi^{(3)}$ instantané est compensable car sa partie centrale, correspondant aux plus fortes intensités, est linéaire.

Les non-linéarités liées à une cascade de $\chi^{(2)}$ ne sont pas des phénomènes instantanés dans la mesure où la différence de vitesse de groupe entre les champs apporte des modulations temporelles aux phases. La figure 4.18, prenant pour exemple la plus grande variation de phase positive lors du doublage dans β -BBO, montre un chirp qui ressemble au chirp linéaire mais en est déjà trop éloigné pour

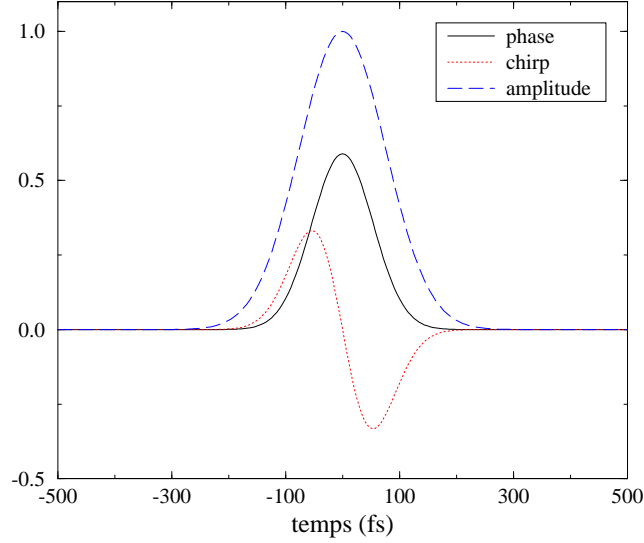


FIG. 4.17 –: *Chirp lié à un $\chi^{(3)}$ instantané. Les différentes courbes n'ont pas les mêmes unités et leur rapport d'échelle est quelconque.*

être compensable avec une ligne de dispersion à prismes ou à réseaux classique. Cependant c'est une des meilleures configurations pour produire un chirp pas trop éloigné du chirp linéaire.

La figure 4.19 illustre le cas le plus défavorable. Il s'agit de somme de fréquence et d'un angle de désaccord de phase produisant une phase temporelle très modulée.

Ce genre de comportement non linéaire du chirp avait été prévu par le calcul pour des impulsions picosecondes [82]. Ce chirp difficilement compensable oblige l'expérimentateur à se placer à l'accord de phase parfait s'il veut garder une impulsion courte et une phase temporelle plate.

Lors d'un déphasage négatif il peut arriver que l'on recomprime l'impulsion en compensant le chirp initialement présent [56]. La dissymétrie de la courbe 4.12 est peut-être due à une compensation partielle du chirp dans le sens d'un n_2^{eff} négatif (vers le haut) et à une addition du chirp naturel avec celui induit par la cascade de $\chi^{(2)}$ dans l'autre sens.

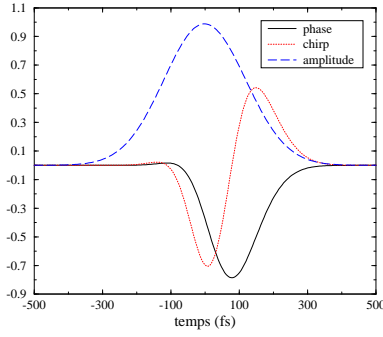


FIG. 4.18 –: Phase et chirp liés au doublage hors accord de phase. Les différentes courbes n'ont pas les mêmes unités et leur rapport d'échelle est quelconque.

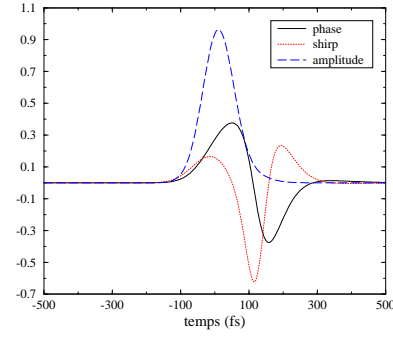


FIG. 4.19 –: Phase et chirp liés à la somme de fréquence hors accord de phase. Les différentes courbes n'ont pas les mêmes unités et leur rapport d'échelle est quelconque.

4.4.1.4 Les valeurs et signes des non-linéarités

Pour évaluer l'importance de la variation de phase induite par le $\chi^{(2)}$ en cascade, il faut calculer un n_2^{SHG} homogène au n_2 lié au $\chi^{(3)}$. L'expression approchée 4.7 issue des équations de propagation 2.46 et 2.47 permet de comparer les contributions en fonction de la longueur L du cristal et du désaccord de phase Δk :

$$n_2^{SHG} = -\frac{4\pi}{c\varepsilon_0} \frac{L}{\lambda} \frac{d_{eff}^2}{n_{\omega_3} n_{\omega_1}^2} \frac{1}{\Delta k_{\Sigma} L} \quad (4.7)$$

alors que le n_2 lié au $\chi^{(3)}$ s'écrit :

$$n_2 = \frac{3\chi^{(3)}}{4c\varepsilon_0 n_0^2} \quad (4.8)$$

En prenant l'exemple de β -BBO, avec un cristal de $1mm$ de long utilisé pour le doublage de type I et pour un désaccord de phase induisant une variation de phase maximum, le rapport entre le n_2 d'origine Kerr et le n_2^{SHG} est d'environ 50 au bénéfice de l'effet en cascade; les calculs ont été faits avec pour coefficients: $d_{eff} = 2,3 \cdot 10^{-12} m/V$ et $n_2 = 8 \cdot 10^{-22} m^2/V^2$ [83]. Les mesures expérimentales faites en se plaçant, soit proche de l'accord de phase du doublage, soit très loin de celui-ci permettent de retrouver ce rapport.

La relation 4.7 montre que le signe de n_2^{SHG} est lié au signe du désaccord de phase. Il est par contre indépendant du signe de d_{eff} qui n'est donc pas mesurable lors de cette expérience.

Il faut remarquer que le n_2^{SHG} , de l'équation 4.7, est établie dans le cas du doublage de fréquence. A la vue de la forte dépendance temporelle de la variation de phase lors de la somme de fréquence liée aux différences de vitesses de groupes entre les impulsions, il ne nous est plus permis de poser un n_2 effectif. En introduisant dans l'équation 4.7 un terme prenant en compte la différence de vitesse de groupe nous calculerions alors un coefficient correspondant à la réponse au temps nul, dont l'amplitude serait fortement réduite par rapport à n_2^{SHG} .

4.4.2 Autres cascades non linéaires

En faisant des mesures du mode phononique A_1 de KNbO_3 , nous avons enregistré une modulation de la phase qui n'est pas d'origine Raman (voir la figure 4.5).

4.4.2.1 Mesures en fonction de la longueur d'onde

Nous avons remarqué que l'amplitude de la modulation varie en fonction de la longueur d'onde du faisceau pompe ; nous l'avons faite varier de $790nm$ à $957nm$. La modulation est faible pour une pompe à $615nm$, passe par un maximum à $850nm$ (voir la figure 4.21) puis diminue de nouveau en s'éloignant de $850nm$ vers les grandes longueurs d'onde.

Nous avons constaté que l'amplitude de la modulation n'est pas directement liée à la longueur d'onde du faisceau pompe mais à l'efficacité de doublage de celle-ci. Comme le montre la courbe d'accord de phase du doublage de type I dans KNbO_3 (figure 4.20), notre cristal est taillé de manière à doubler la longueur d'onde de $850nm$ efficacement en incidence normale¹⁷.

La modulation que nous observons est sûrement liée à un mélange entre la pompe doublée, la sonde et aussi la pompe. Il est donc possible qu'il s'agisse d'une cascade du doublage de la pompe suivie d'une autre non-linéarité.

Le cristal de KNbO_3 est connu pour avoir des non-linéarités importantes ; il est donc important, de chercher dans l'ensemble des non-linéarités possibles avant de choisir celle qui convient à l'effet mesuré [84, 85].

Il faut exclure une contribution d'un $\chi^{(2)}$ en cascade entre la pompe et sa première harmonique ; en effet, si ce terme existe sûrement, il est invisible pour le faisceau sonde car il ne participe pas au doublage du champ pompe¹⁸.

17. Le cristal de KNbO_3 est taillé pour avoir le plan (b,c) sur sa surface (voir la figure 4.4 donnant les axes cristallins de KNbO_3).

18. Pour être modulé en phase par la cascade le champ sonde doit être couplé aux champs pompe et pompe doublé, comme expliqué en section 4.4.1.1.

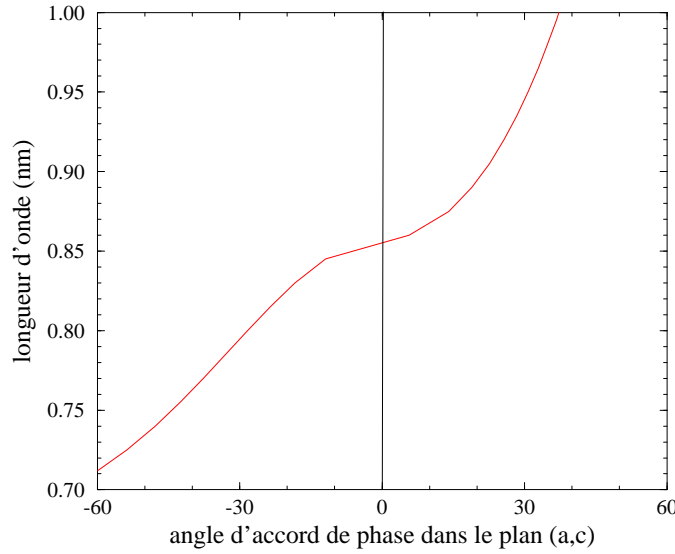


FIG. 4.20 –: Accord de phase pour le doublage de type I dans KNbO_3 ; l'angle est exprimé en fonction de l'axe z

Notre recherche d'une interprétation de ces expériences nous conduit à considérer la rectification optique ou des non linéarités d'ordre supérieur.

4.4.2.2 La rectification optique

La rectification optique [86] est un autre phénomène du second ordre présent dans KNbO_3 produisant une variation de phase avec l'aide de l'effet Pockels. La rectification optique produit un champ de polarisation statique, ou quasi-statique [60] tel que :

$$P_S(0) = \varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_1, -\omega_1, 0) \cdot \Psi_1(\omega_1) \cdot \Psi_1^*(-\omega_1) \quad (4.9)$$

Ce champ statique P_S induit par effet Pockels une polarisation à la fréquence ω_2 sur le faisceau de sonde telle que :

$$P_P(\omega_2) = \varepsilon_0 \chi^{(2)}(\omega_2, -\omega_2, 0) \cdot \Psi_2(\omega_2) \cdot \Psi_S(0) \quad (4.10)$$

Cette cascade de rectification optique suivie par un effet Pockels est très efficace dans KNbO_3 pour des configuration de polarisation correspondant à celles de nos expériences [84]. En particulier, pour un faisceau polarisé suivant l'axe z , le n_2 équivalent de la cascade a été évalué au deux tiers du n_2 naturel lié au $\chi^{(3)}$ [85, 87].

Une impulsion femtoseconde provoque une variation rapide de la polarisation induite par la rectification optique. A cette variation de polarisation est liée l'émission d'une onde électromagnétique dont le spectre a une étendue inversement proportionnelle à la durée de la variation [60, 88].

Dès l'invention du laser femtoseconde (CPM à colorant) ces radiations ont été observées dans des milieux non centrosymétriques comme, par exemple, dans le tantalate de lithium (LiTaO_3) en 1984 [89]. Dans cet exemple, l'auteur mesure par une technique de porte Kerr résolue en temps une dynamique temporelle correspondant à une émission centrée à 1.5THz avec des impulsions d'au moins 100fs. Cette onde ayant une propagation suivant un cône centré sur la direction de propagation du laser, l'auteur l'a appelée radiation Cherenkov par analogie avec la radiation Cherenkov produite par le déplacement relativiste de particules chargées dans un milieu diélectrique.

Pour des impulsions de 100fs, le spectre d'émission engendré est centré sur une fréquence de 3THz ($\sim 100\text{cm}^{-1}$), soit une longueur d'onde de $100\mu\text{m}$ ou une période de 1800fs [88]. Cette approximation rapide correspond bien à ce que nous observons sur la figure 4.21.

Il reste cependant une interrogation majeure : l'amplitude du signal observée semble liée à l'accord de phase du doublage de l'infrarouge, qui ne semble pas intervenir dans le processus de rectification optique. Cette hypothèse resterait pourtant valable si il se trouvait que la rectification optique est beaucoup plus efficace dans les courtes longueurs d'onde que dans l'infrarouge. Je n'ai pas trouvé de documentation sur une dépendance spectrale de la rectification optique ; ce point reste donc une interrogation pour moi. Il faut donc continuer notre exploration des non linéarités optiques vers des ordres plus élevés pour vérifier si celles-ci ne sont pas plus probables.

4.4.2.3 Non linéarité d'ordre plus élevé

En considérant des non-linéarités d'ordre plus élevé, nous pensons immédiatement au n_2 électronique du matériau.

Le terme d'automodulation de phase du faisceau sonde sur lui même est négligeable devant les termes de modulation de phase croisé si $|\Psi_2|^2 \ll |\Psi_1|^2$ et $|\Psi_2|^2 \ll |\Psi_3|^2$. Sur les figures 4.21 et 4.23 nous pouvons clairement identifier le terme lié à la pompe de la forme $\chi^{(3)}\Psi_1\Psi_1^*\Psi_2$ qui reproduit la trace de corrélation du troisième ordre des impulsions pompe et sonde. Par contre le signal très modulé qui suit ne ressemble en rien à la corrélation des impulsions harmonique et sonde $\chi^{(3)}\Psi_3\Psi_3^*\Psi_2$. En effet ce terme devrait reproduire la forme temporelle de l'impulsion de pompe doublée.

La première non linéarité après $\chi^{(3)}$, induisant une variation de phase, est $\chi^{(5)}$. La polarisabilité d'ordre 5 s'écrit [90] :

$$P_2^{(5)}(\omega_2) = \chi_{(-\omega_2; \omega_1, -\omega_1, \omega_3, -\omega_3, \omega_2)}^{(5)} \Psi_1 \Psi_1^* \Psi_3 \Psi_3^* \Psi_2 \quad (4.11)$$

$$P_2^{(5)}(\omega_2) = \chi_{(-\omega_2; \omega_1, -\omega_1, \omega_3, -\omega_3, \omega_2)}^{(5)} \Psi_1 \Psi_3 \Psi_1^* \Psi_3^* \Psi_2 \quad (4.12)$$

où Ψ_1 est le champ de pompe de l'expérience, Ψ_2 le champ de sonde et Ψ_3 la première harmonique de Ψ_1 . Il faut être prudent avant de recourir à un ordre aussi élevé de non linéarité ; en effet, le coefficient effectif associé à celle-ci est au minimum d'un ou deux ordres de grandeur plus faible que celui de $\chi^{(3)}$.

En se souvenant que nous ne mélangeons pas trois champs quelconques, mais que Ψ_3 est issu du doublage de Ψ_1 tel que $\omega_3 = 2\omega_1$, il apparaît une polarisation non linéaire d'ordre 4 permettant la modulation de phase croisée et une interaction entre Ψ_1, Ψ_2 et Ψ_3 :

$$P_2^{(4)}(\omega_2) = \chi_{(-\omega_2; \omega_1, \omega_1, -\omega_3, \omega_2)}^{(4)} \Psi_1 \Psi_1 \Psi_3^* \Psi_2 \quad (4.13)$$

Il faut remarquer que la polarisation $P^{(4)}$ requiert le même accord de phase que celui du doublage alors que la polarisation $P^{(5)}$ est toujours en situation d'accord de phase. Bien que nous n'ayons pas réussi à trouver la valeur effective du $\chi^{(4)}$ de nos cristaux, elle est sûrement plus importante que celle du $\chi^{(5)}$; nous préférons donc utiliser la polarisation d'ordre 4 pour expliquer nos signaux. N'ayant pas de valeur numérique pour le coefficient effectif associé à ce $\chi^{(4)}$, le calcul d'un modèle théorique et la comparaison avec les expériences ne peuvent être que qualitatives.

Du fait qu'il y a d'abord doublage grâce au $\chi^{(2)}$, puis variation de phase liée à un $\chi^{(4)}$ mélangeant les champs fondamentaux et le champ harmonique, il s'agit encore d'une cascade de non linéarité : une cascade de $\chi^{(2)}$ et $\chi^{(4)}$. Elle permet de coupler les champs Ψ_1, Ψ_2 et Ψ_3 et donc, de tenir compte de leurs vitesses de groupe respectives.

Une simulation grossière avec des coefficients non linéaires *évalués* permet de constater que l'on peut retrouver la forme modulée de la phase mesurée. Par contre la durée de cette modulation est toujours inférieure à la picoseconde (comme pour les expériences de la section 4.4.1). Il est donc possible que cette cascade $\chi^{(2)}-\chi^{(4)}$ ne soit pas l'explication idéale de nos mesures.

Nous avons retrouvé le même comportement dans les cristaux de β -BBO utilisés en doubleur. Quelle que soit la longueur d'onde de la pompe nous avons toujours vu ces modulations pour un accord de phase *parfait*¹⁹. Ainsi les sec-

19. En dehors de l'accord de phase c'est la cascade de $\chi^{(2)}$ qui prédomine (voir la section 4.4.1.1).

tions suivantes présentent des expériences complémentaires faites pour différentes épaisseurs d'échantillon ou différentes énergies de pompe.

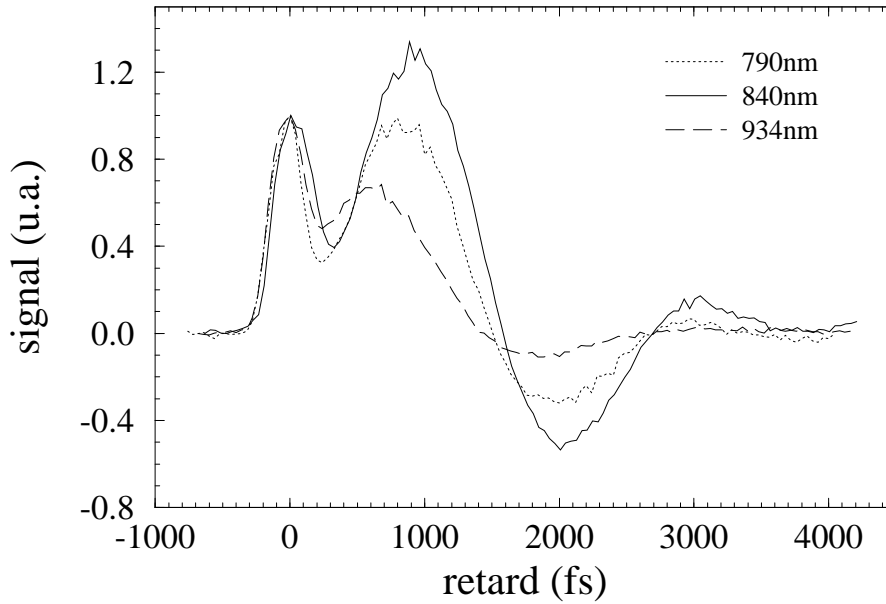


FIG. 4.21 – : *Effets en cascade, dans un cristal de KNbO_3 de 500 μm d'épaisseur, pour trois longueurs d'onde du faisceau de pompe autour de l'accord de phase pour le doublage de type I (790nm, 840nm et 934nm).*

4.4.2.4 Expériences pour différentes épaisseurs

Les mesures, présentées dans la figure 4.22, correspondent à la somme de fréquence entre les faisceaux pompe et sonde avec accord de phase ($\Delta k = 0$), dans deux cristaux de β -BBO de 0.5 et 2 millimètres d'épaisseur dans une configuration de type I. Les champs pompe et sonde sont à la même longueur d'onde de 615nm, de manière à ce que le terme de polarisation d'ordre 4 existe. Nous sommes dans la même approximation d'énergie que pour les mesures de $\chi^{(2)}$ en cascade lors de la somme de fréquence présentée en section 4.4.1.2, nous garantissant la réponse temporelle en phase d'une somme de fréquence sans retard variable entre les faisceaux.

La mesure en fonction de l'épaisseur de cristal traversé montre que la période apparente de la modulation engendrée est mieux définie pour une propagation faible.

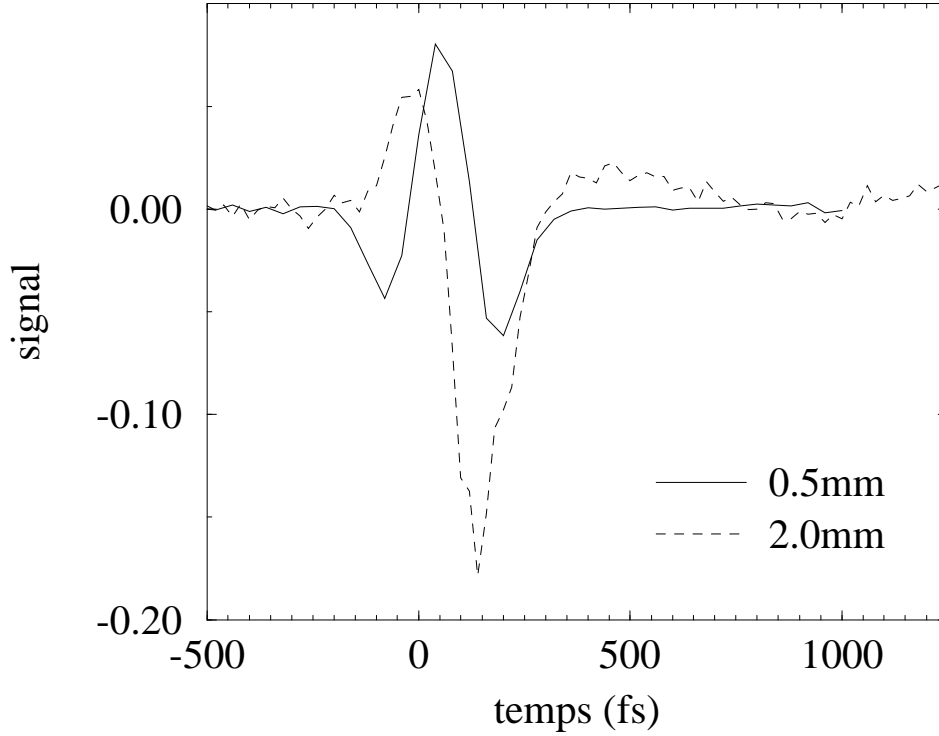


FIG. 4.22 –: *Mesure de la variation de phase sur la sonde lors d'une cascade $\chi^{(2)}$, $\chi^{(4)}$ pour des propagations de 0.5mm et 2mm dans β -BBO*

Dans l'hypothèse de la rectification optique, cela peut s'expliquer en considérant que la largeur spectrale de l'onde émise augmente avec l'épaisseur du matériau [88]. Ou bien, cela confirme le rôle de la dispersion de vitesse de groupe entre les ondes dans une cascade $\chi^{(2)}$ - $\chi^{(4)}$. Cette série d'expériences ne permettant pas de choisir entre les deux modèles.

Nous remarquons sur ces mesures que la réponse électronique du n_2 naturel est cachée par la modulation. Il est donc difficile d'évaluer sa contribution par rapport à celle de la cascade. Nous pouvons juste conclure que les deux effets sont du même ordre de grandeur.

4.4.2.5 Expériences en fonction de l'énergie

Pour nos mesures en fonction de l'énergie nous avons choisi de comparer la modulation de phase croisée d'ordre 3 et la cascade $\chi_{rectification}^{(2)}$ - $\chi_{Pockels}^{(2)}$ ou $\chi^{(2)}$ - $\chi^{(4)}$. Nous avons donc choisi une longueur d'onde de pompe différente du test.

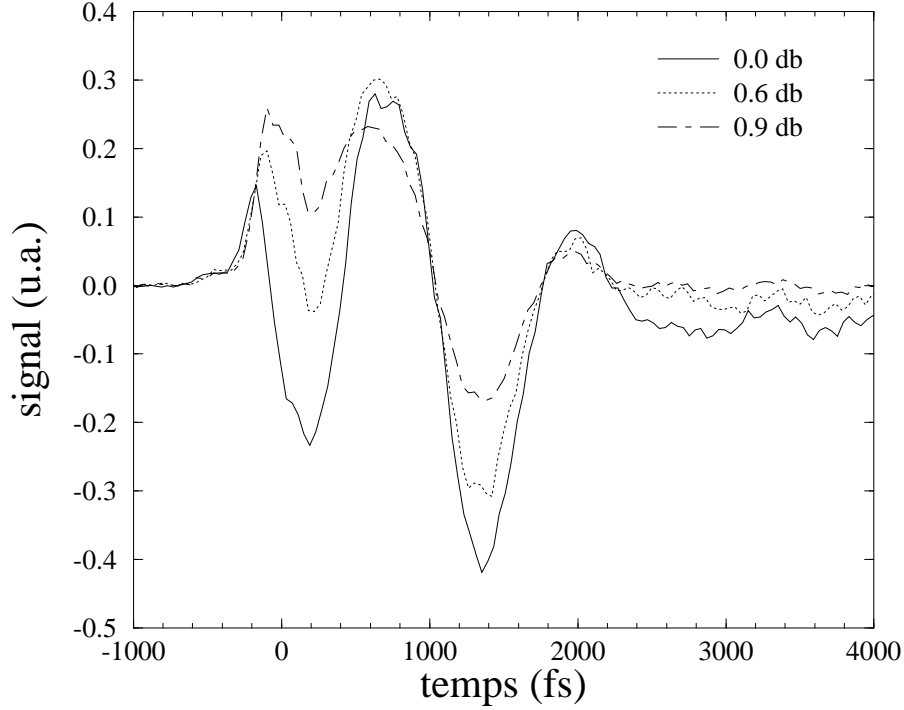


FIG. 4.23 –: *Effet en cascade fonction de l'énergie IR dans KNbO_3 lors du doublage de type I de la pompe à 810nm*

Pour avoir une dynamique importante en énergie en conservant des signaux forts nous avons choisi une longueur d'onde de pompe de 810nm située au maximum de rendement de l'amplificateur paramétrique optique dans son spectre d'accordabilité.

Les mesures ont été faites pour des énergies de pompe variant de $\sim 2\mu\text{J}$ à $\sim 0.2\mu\text{J}$, soit un ordre de grandeur.

Nous avons choisi le cristal de KNbO_3 orienté de manière à doubler efficacement la pompe à 810nm .

Les résultats, illustrés par la figure 4.23, montrent que les amplitudes des deux non-linéarités sont du même ordre de grandeur, la non-linéarité en cascade devenant prédominante aux fortes énergies. La variation de phase mesurée sur la sonde au temps nul correspond à un mélange entre la modulation croisée liée au $\chi^{(3)}$ et l'effet de phase de la cascade. Les deux effets sont de signe opposé, ce qui permet de montrer que la cascade a une variation en intensité plus rapide que le

$\chi^{(3)}$ électronique. Il est impossible de dire si l'une est quadratique par rapport à l'autre, mais *nous pouvons tout de même conclure que ce sont deux non-linéarités d'ordre différent.*

Nous remarquons aussi que le cristal ayant toujours la même épaisseur, les modulations en temps des trois mesures ont la même pseudo-période.

4.4.3 Conclusions

Les non-linéarités en cascade ont pris de l'importance ces dernières années. Elles sont étudiées au niveau des laboratoires, pour la compression d'impulsion [56, 91-93], mais aussi pour les fortes modulations qu'elles apportent sur le spectre et la forme temporelle des impulsions femtoseconde, dans des milieux épais [94]. La variation de phase induite par ces cascades de $\chi^{(2)}$ est contrôlable en amplitude et en signe. De plus le déphasage induit est d'un ordre de grandeur ou deux plus important que celui induit par un n_2 *classique*. Ces propriétés sont très attractives, mais elles cachent cependant quelques défauts.

Nous avons montré par l'expérience que ces déphasages ne suivent pas la forme temporelle de l'impulsion. Ils sont susceptibles d'engendrer un chirp non compensable dans des impulsions femtosecondes si l'interaction a lieu sur des distances trop importantes (quelques centaines de microns). En effet, la dispersion de vitesse de groupe entre les ondes de l'interaction module suivant une pseudo-période le déphasage induit.

Nous avons aussi mis en évidence et mesuré la dynamique temporelle d'un second effet en cascade. Celui-ci combine la génération de seconde harmonique et soit un terme de polarisation d'ordre 4, soit la rectification optique suivi de l'effet Pockels.

Conclusion

Au cours de ce travail j'ai abordé deux problématiques différentes dans le domaine de la physique ultra rapide liée aux lasers femtosecondes :

- La première concerne la réalisation et la caractérisation de sources laser femtosecondes utilisant des processus non linéaires. J'ai réalisé un amplificateur paramétrique optique femtoseconde et j'ai étudié des non linéarités en cascade liées à la somme ou la différence de fréquences.
- La seconde traite de la spectroscopie impulsionnelle, et particulièrement de l'étude des phonons et de leur vecteur d'onde. J'ai pour cela monté une expérience de type pompe-sonde permettant de mesurer l'évolution temporelle de phases non linéaires. Les calculs et les expériences ont permis de déterminer les phonons en fréquence et en vecteur d'onde.

Les composantes les plus importantes du système expérimental sont l'amplificateur paramétrique et le système de mesure de phase.

L'amplificateur paramétrique optique femtoseconde délivre un faisceau accordable dans l'infrarouge proche, de $780nm$ à $960nm$. Son énergie moyenne est de quelques micro joules pour une durée d'environ $80fs$.

Il est constitué de deux étages d'amplification paramétrique de type I dans des cristaux de β -BBO portant l'impulsion de départ, prélevée dans un continuum, du nano joule au micro joule. La condition angulaire d'accord de phase, dans le premier étage d'amplification, fait la sélection, dans le continuum, de la longueur d'onde à amplifier.

Dans le cas particulier d'une longueur d'onde de pompe à $615nm$, l'accord de phase est peu critique en angle, et le spectre amplifié est beaucoup trop large. Pour accentuer la sélection spectrale le premier étage est monté en accord de phase non colinéaire. Nous obtenons de cette manière des impulsions dont le produit durée par largeur du spectre est proche de la limite théorique. Cette configuration d'accord de phase non colinéaire est généralement utilisée dans les systèmes paramétriques femtosecondes pour élargir l'acceptance spectrale, dans notre cas, il a, au contraire, servi à la réduire.

Le détecteur de phase est la seconde réalisation expérimentale importante. Ce sont les performances de la technique Z-scan qui nous ont conduit à réaliser un système alliant mesure de déphasage et résolution temporelle. L'amplitude des non-linéarités optiques de type Kerr suit le profil d'intensité du laser. Celui-ci étant gaussien, ou d'une forme approchée, le déphasage Kerr induit a une répartition d'amplitude spatiale gaussienne. Dans une approximation que nous avons évaluée, le profil de phase induit correspond à une lentille, entraînant une variation de la divergence du faisceau de sonde. Nous avons montré que la mesure de divergence par filtrage spatial en champ lointain permet une mesure linéaire du déphasage induit, donnant l'information sur le signe de la non-linéarité.

Contrairement au Z-scan, dans une expérience pompe-sonde nécessaire à une discrimination temporelle, le nombre de paramètres géométriques à contrôler sur les faisceaux pour faire une mesure linéaire est important. Nous avons donc mené une simulation numérique du système de mesure de manière à en déterminer la zone de fonctionnement optimale. Il apparaît alors un critère unique, baptisé critère de lentille de Kerr, qui permet, s'il est respecté, de garantir la linéarité du système de mesure sur une dynamique donnée.

Le critère de lentille de Kerr est basé sur le calcul de la propagation du faisceau sonde dans l'échantillon et jusqu'au détecteur. Il utilise la décomposition en somme d'aberrations géométriques de la phase induite dans le plan de l'échantillon, et en particulier les termes d'aberrations sphériques de la décomposition en polynômes de Zernike [26].

Nous avons étudié l'influence de la forme du filtrage spatial (trou ou anneau) sur la sensibilité du système, et montré qu'un filtrage hors de l'axe (anneau) est dix fois plus sensible qu'un filtrage centré [25]. La dynamique de mesure est, par contre, réduite.

La sensibilité expérimentale observée est supérieure ou égale à $\lambda/500$ et la dynamique de mesure varie de 10 à 1000 suivant la configuration choisie. Cette dynamique importante nous a permis de mesurer aussi bien des déphasages forts (cascades de $\chi^{(2)}$) que des déphasages faibles (phonon).

Les calculs pour établir le critère de lentille de Kerr nous ont permis d'envisager de mesurer la variation de divergence sans utiliser le filtrage spatial. En effet, en mesurant la répartition d'amplitude du faisceau en champ lointain, il est possible de recomposer la surface d'onde dans l'échantillon, et d'en déduire une valeur plus précise de la non-linéarité. Il faut pour cela remplacer le filtre spatial par un capteur matriciel, comme une caméra vidéo.

Nous espérons de cette manière, pouvoir séparer les contributions non symétriques dans le front d'onde et étendre la technique à la mesure de phonons optiques non symétriques.

Ce système expérimental de mesure de phase, nous a permis de faire de la spectroscopie non linéaire proche du centre de la première zone de Brillouin et

aussi, de mettre en évidence la dynamique temporelle de phases liées à des non-linéarités en cascade.

La section efficace Raman d'un phonon est liée à la partie imaginaire de la non-linéarité d'ordre 3: $\chi^{(3)}$, lors d'une induction non linéaire. Au phonon est alors associée une variation non linéaire de l'indice mesurable avec notre système de mesure de phase résolue en temps.

Nous avons déterminé le vecteur d'onde associé aux phonons que nous mesurons. Cette détermination est importante car beaucoup de nos mesures sont dans une zone de dispersion polariton proche du centre de la première zone de Brillouin.

Le calcul du vecteur d'onde fait apparaître deux processus pour l'induction du phonon, avec pour chacun une valeur différente du vecteur d'onde.

Le premier processus est qualifié d'impulsionnel : il correspond à une induction non résonnante du phonon utilisant tout le spectre de l'impulsion laser. Le vecteur d'onde se calcule alors en utilisant la longueur d'onde centrale du laser.

Le second processus consiste à induire le phonon de manière résonnante en lui fournissant deux longueurs d'onde séparées de la fréquence du phonon. Ce processus est connu sous le nom de CARS. Nos impulsions courtes ont un spectre large ; il est alors possible de considérer ce spectre comme un ensemble de couples de fréquences espacées de la fréquence du phonon. Le système se trouve dans une configuration CARS correspondant à un vecteur d'onde différent du cas impulsionnel car il utilise un couple discret de longueurs d'onde [51].

Les expériences de mesure de phonon sur les cristaux de LiIO_3 et KNbO_3 utilisant la technique de mesure de lentille de phase résolue en temps, ont permis d'isoler le cas impulsionnel en comparant des expériences faites avec des longueurs d'onde pompe et sonde identiques avec des expériences faites à deux longueurs d'onde.

Les expériences de réseaux induits isolent elles aussi le cas impulsionnel, par une sélection géométrique de l'accord de phase impulsionnel. Cela a été montré en mesurant la dispersion polariton des deux premiers modes A_1 de KNbO_3 .

Pour isoler le cas dénommé CARS, il a fallu se placer dans la zone de dispersion polariton avec une expérience conservant l'accord de phase du CARS. Pour cela a été réalisée une expérience de type porte Kerr sur le mode non symétrique E de PbTiO_3 . Une mesure homodyne du signal correspond à un processus impulsionnel, alors qu'une mesure hétérodyne du signal, par ajout d'un oscillateur local, correspond au processus CARS [78].

Pour mieux comprendre les processus d'échange d'énergie entre le milieu et les champs laser, qui déterminent les vecteurs d'ondes, une résolution spectrale du signal émis est en cours.

Nous avons mesuré la dynamique temporelle du déphasage induit par une cascade de $\chi^{(2)}$ dans un système de doublage puis de somme de fréquences en régime femtoseconde.

Les variations de phase mesurées dans des cristaux de β -BBO sont de cinquante à cent fois plus importantes que celles provoquées par effet Kerr. De plus, le signe du déphasage dépend du signe du désaccord de phase.

Il apparaît que ce déphasage a une évolution en temps qui le distingue des phénomènes instantanés de modulation de phase comme l'effet Kerr de type électronique. Nous avons montré que les modulations en temps de la phase sont liées à la forme temporelle des impulsions mais aussi aux différences de vitesse de groupe entre les ondes. Ces modulations ne suivent pas le profil temporel des impulsions et provoquent donc un décalage temporel des fréquences du spectre du laser (communément appelé chirp). Ce décalage n'est pas compensable avec des systèmes classiques comme les lignes de dispersion à réseau ou à prisme, car il n'est pas linéaire. Il altère alors les qualités temporelle et spectrale de l'impulsion femtoseconde. Cette cascade de $\chi^{(2)}$ peut devenir un inconvénient dans les systèmes non linéaires femtosecondes si elle n'est pas prise en compte lors de leur conception. Sa bonne utilisation peut, par contre, permettre de compenser des défauts existant dans les impulsions.

Nous prévoyons à court terme de mesurer la dépendance temporelle de l'effet de phase lié à une cascade au cours de l'amplification paramétrique pour quantifier son influence sur les caractéristiques temporelles et spectrales du faisceau amplifié.

Bibliographie

- [1] D. Malacara, *Optical Shop Testing*, Pure and Applied Optics. Wiley-Interscience, 2 edition, 1992.
- [2] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, Tai-Huei Wei, D. J. Hagan et E. W. Van Stryland, "Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam", *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. 26, no. 4, pp. 760–769, 1990.
- [3] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, D. J. Hagan, M. J. Soileau et E.W. Van Stryland, "Nonlinear refraction and optical limiting in thick media", *Optical Engineering*, vol. 30, no. 8, pp. 1228–1235, 1991.
- [4] M. Sheik-Bahae, J. Wang, R. DeSalvo, D. J. Hagan et E. W. Van Stryland, "Measurement of nondegenerate nonlinearities using a two-color Z-scan", *Optics Letters*, vol. 17, no. 4, pp. 258–260, 1992.
- [5] J. Wang, M. Sheik-Bahae, A. A. Said, D. J. Hagan et E. W. Van Stryland, "Time-resolved Z-scan measurement of optical nonlinearities", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 11, no. 6, pp. 1009–1017, 1994.
- [6] T. Xia, D. J. Hagan, M. Sheik-Bahae et E. W. Van Stryland, "Eclipsing Z-scan measurement of $\lambda/10^4$ wave-front distortion", *Optics Letters*, vol. 19, no. 5, pp. 317–319, 1994.
- [7] P. B. Chapple, J. Staromlynska et R. G. McDuff, "Z-scan studies in the thin- and thick-sample limits", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 11, no. 6, pp. 975–982, 1994.
- [8] W. Zhao et P. Palffy-Muhoray, "Z-scan technique using top-hat beams", *Appl. Phys. Lett.*, vol. 63, no. 12, pp. 1613–1615, 1993.
- [9] J. G. Tian, W. P. Zang et G. Zhang, "Two modified Z-scan methods for determination of nonlinear-optical index with enhanced sensitivity", *Optics Communications*, vol. 107, pp. 415–419, 1994.
- [10] B. D. Guenther, *Modern Optics*, John Wiley & sons, 1990.
- [11] Born et Wolf, *Principles of optics*, Pergamon Press, 5 edition, 1995.

- [12] S. M. Mian, B. Taheri et J. P. Wicksted, "Effects of beam ellipticity on z-scan measurements", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 13, no. 5, pp. 856–863, 1996.
- [13] B. K. Rhee, J. S. Byun et E. W. Van Stryland, "Z scan using circularly symmetric beams", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 13, no. 12, pp. 2720–2723, 1996.
- [14] A. Yariv et P. Yeh, "The application of gaussian beam formalism to optical propagation in nonlinear media", *Optics Communications*, vol. 27, no. 2, pp. 295–298, 1978.
- [15] S. Hughes, J. M. Burzler, G. Spruce et B. S. Wherrett, "Fast Fourier transform techniques for efficient simulation of Z-scan measurements", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 12, no. 10, pp. 1888–1893, 1995.
- [16] P. S. Spencer et K. A. Shore, "Pump-probe propagation in a passive Kerr nonlinear optical medium", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 12, no. 1, pp. 67–71, 1995.
- [17] P. P. Banerjee, R. M. Misra et M. Maghraoui, "Theoretical and experimental studies of propagation of beams through a finite sample of a cubically nonlinear material", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 8, no. 5, pp. 1072–1080, 1995.
- [18] R. DeSalvo, M. Sheik-Bahae, A. A. Said, D. J. Hagan et W. Van Stryland, "Z-scan measurement of the anisotropy of nonlinear refraction and absorption in crystals", *Optics Letters*, vol. 18, no. 3, pp. 194–196, 1993.
- [19] A. Marcano O., H. Maillotte, D. Gindre et D. Métin, "Picosecond nonlinear refraction measurement in single-beam open Z scan by charge-coupled device image processing", *Optics Letters*, vol. 21, no. 2, pp. 101–103, 1996.
- [20] T. G. Harvey, W. Ji, A.K. Kar et B. S. Wherret, "Theory of elliptical defocusing in anisotropic nonlinear-optical media", *Optics Letters*, vol. 15, no. 8, pp. 408–410, 1990.
- [21] D. Weaire, B. S. Wherret, D. A. B. Miller et S. D. Smith, "Effect of low-power nonlinear refraction on laser-beam propagation in InSb", *Optics Letters*, vol. 4, no. 10, pp. 331–333, 1979.
- [22] A. Fresnel, *Oeuvres complètes d'Augustin Fresnel*, vol. 1, MM. Henri Hureau de Senarmont, Emile Verdet et Leonor Fresnel, Paris: Imprimerie impériale, 1866-1870.
- [23] P. M. Duffieux, *The Fourier transform and its applications to optics*, John Wiley & Sons, 2 edition, 1983.

- [24] R. Petit, *L'outil mathématique*, Masson, 3 edition, 1991.
- [25] O. Albert, D. P. Kien, J. C. Loulergue et J. Etchepare, "Time-resolved phase deformation analysis of induced Kerr nonlinearities: application to phonon mode determination", *Optics Communications*, vol. 114, pp. 315–320, 1995.
- [26] O. Albert, J.C. Loulergue et J. Etchepare, "Mesure linéaire de la variation de phase associée à une non-linéarité Kerr", *Ann. Phys. Fr.*, vol. 20, pp. 589–590, 1995.
- [27] A. Marcano O., H. Maillotte, D. Gindre et D. Métin, "Determination of non-linear refraction through the measurement of light wave-front distortions", *SPIE Proceeding*, vol. 2730, pp. 405–408, 1996.
- [28] F.E. Hernández, A. Marcano O. et H. Maillotte, "Sensitivity of the total beam profile Z-scan for the measurement of nonlinear refraction", *Optics Communications*, vol. 134, no. 3, pp. 529–536, 1997.
- [29] I. Kang, T. D. Krauss, F. W. Wise, B. G. Aitken et N. F. Borrelli, "Femto-second measurement of enhanced optical nonlinearities of sulfide glasses and heavy-metal-doped oxide glasses", *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 12, no. 11, pp. 2053–2059, 1995.
- [30] F. Li, Y. Song, K. Yang, S. Liu et C. Li, "Measurement of the c_{60} molecular polarizability of the excited singlet state using Z-scan", *Optics Communications*, vol. 145, no. 1, pp. 53–56, Janvier 1998.
- [31] Yu B., C. Zhu, F. Gan, X. Wu, G. Zhang, G. Tang et W. Chen, "Optical nonlinearities of Fe_2O_3 nanoparticles investigated by Z-scan technique", *Optical Materials*, vol. 8, no. 4, pp. 249, Novembre 1997.
- [32] I. Kang, S. Smolorz, T. Krauss, F. Wise, B.G. Aitken et N.F. Borrelli, "Time-domain observation of nuclear contributions to optical nonlinearities of glasses", *Phys. Rev. B*, vol. 54, no. 18, pp. 641–645, 1996.
- [33] K. Y. Tseng, K. S. Wong et G. K. L. Wong, "Femtosecond time-resolved Z-scan investigations of optical nonlinearities in ZnSe", *Optics Letters*, vol. 21, no. 3, pp. 180–182, 1996.
- [34] D. O. Caplan, G. S. Kanter et P. Kumar, "Characterisation of dynamic optical nonlinearities by continuous time-resolved Z-scan", *Optics Letters*, vol. 21, no. 17, pp. 1342–1344, 1996.
- [35] F. Zernike, "Beugungstheorie des schneidenverfahrens und seiner verbesserten form, der phasenkontrastmethode", *Physica*, vol. 1, 1934.

- [36] Dany Penn Kien, *Etude dans le domaine temporel de la dynamique cristalline d'oxydes ferroélectriques*, Thèse de doctorat, Université Paris 7 Denis Diderot, octobre 1994.
- [37] C. A. Gautier, J.C. Loulergue et J. Etchepare, "Homodyne and heterodyne impulsive Raman Kerr nonlinearities in crystals: application to E-symmetry polariton modes in PbTiO_3 ", *Solid State Communications*, vol. 100, no. 3, pp. 133–136, 1996.
- [38] H. Poulet et J. P. Mathieu, *Spectres de vibration et symétrie des cristaux*, Gordon & Breach, 1970.
- [39] R. Claus, L. Merten et J. Brandmüller, *Light scattering by phonon-polaritons*, vol. 75 of *Springer tracts in modern physics*, Springer-Verlag, 1975.
- [40] Y. R. Shen, *The principles of Non-Linear Optics*, John Wiley & Sons, Wiley Interscience, 1984.
- [41] R. Merlin, "Generating coherent THz phonons with light pulses", *Solid State Communications*, vol. 102, no. 2-3, pp. 207–220, 1997.
- [42] Y-X. Yan, E. B. Gamble et K. A. Nelson, "Impulsive stimulated scattering: General importance in femtosecond laser pulse interactions with matter, and spectroscopic applications", *J. Chem. Phys.*, vol. 83, no. 11, pp. 5391–5399, 1985.
- [43] J. P. Foing, *Etude d'une distribution de porteurs hors d'équilibre dans l'arseniure de gallium par spectroscopie femtoseconde*, Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique, Octobre 1991.
- [44] C. Kittel, *Physique de l'état solide*, Dunod, 5 édition, 1983.
- [45] T. Dekorsy, H. Auer, H. J. Bakker, H. G. Roskos et H. Kurz, "THz electromagnetic emission by coherent infrared-active phonons", *Phys. Rev. B*, vol. 53, no. 7, pp. 4005–4015, 1996.
- [46] T. Dekorsy, H. Auer, C. Waschke, H. J. Bakker, H. G. Roskos, H. Kurz, V. Wagner et P. Grosse, "Emission of submillimeter electromagnetic waves by coherent phonons", *Phys. Rev. Letters*, vol. 74, no. 5, pp. 738–741, 1995.
- [47] J. J. Hopfield, ", *Phys. Rev.*, vol. 112, pp. 1555, 1958.
- [48] R. H. Lyddane, R. G. Sachs et E. Teller, ", *Phys. Rev.*, vol. 59, pp. 673, 1941.
- [49] C.K. Asawa, "Frequency versus wave vector for a diatomic ionic orthorhombic biaxial crystal", *Phys. Rev. B*, vol. 2, no. 6, pp. 2068–2077, 1970.

- [50] T. Fukumoto, A. Okamoto, T. Hattori, A. Mitsuishi et T. Fukuda, “Light scattering by polaritons modes of KNbO_3 in orthorhombic phase”, *Solid State Communications*, vol. 17, pp. 427–431, 1975.
- [51] O. Albert, M. Duijser, J. C. Loulergue et J. Etchepare, “Time-resolved nonlinearities from nonsymmetric polar phonons in PbTiO_3 perovskites”, *J.Opt.Soc.Am.B*, vol. 13, no. 1, pp. 29–33, 1996.
- [52] C. K. Asawa et M. K. Barnoski, “Scattering from the E_1 polariton of LiIO_3 ”, *Phys. Rev. B*, vol. 3, no. 8, pp. 2682–2684, 1971.
- [53] D. P. Kien, J. C. Loulergue et J. Etchepare, “Nonlinear response to polariton waves driven in perovskites by femtosecond pulses”, *Optics Communications*, vol. 101, pp. 53–59, 1993.
- [54] F. A. Hopf et G. I. Stegeman, *Applied classical electrodynamics*, vol. 2: Nonlinear optics of *Series in Pure and Applied optics*, Wiley-Interscience, 1985.
- [55] D. A. Kleinman, ”, *Phys. Rev.*, vol. 126, pp. 1977, 1962.
- [56] F. Hache, A. Zéboulon, G. Gallot et G. M. Gale, “Cascaded second-order effects in the femtosecond regime in β -barium borate: self-compression in a visible femtosecond optical parametric oscillator”, *Optics Letters*, vol. 20, no. 14, pp. 1556–1558, 1995.
- [57] W. Joosen, P. Agostini, G. Petite, J. P. Chambaret et A. Antonetti, “broad-band femtosecond infrared parametric amplification in $\beta - \text{BaB}_2\text{O}_4$ ”, *Optics Letters*, vol. 17, no. 2, pp. 133–135, 1992.
- [58] W. Joosen, H. J. Bakker, H. G. Muller, H. B. van Linden et van den Heuvel, “Parametric generation in β -barium borate of intense femtosecond pulses near 800nm”, *J.Opt.Soc.Am.B*, vol. 8, no. 10, pp. 2087–2093, 1991.
- [59] F. Salin, G. Rey, F. Estable et F. Saviot, “High power femtosecond optical parametric generators”, *Advanced Solid Stat Lasers*, 1995.
- [60] A. Bonvalet, M. Joffre, J.L. Martin et A. Migus, “Generation of ultrabroad-band femtosecond pulses in the mid-infrared by optical rectification of 15 fs light pulses at 100 MHz repetition rate”, *Appl. Phys. Lett.*, vol. 67, no. 20, pp. 2907–2909, 1995.
- [61] R. W. Boyd, *NonLinear Optics*, Academic Press, Inc., 1992.
- [62] V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan et D. N. Nikogosyan, *Handbook of Nonlinear Optical Crystals*, vol. 64, Springer-Verlag, 2 edition, 1997.

- [63] Chen Chuangtian, Wu Bochang, Jiang Aidong et You Guiming, “A new-type ultraviolet SHG crystal- $\beta - BaB_2O_4$ ”, *Scientia Sinica(Series B)*, vol. XXVIII, no. 3, pp. 235–243, march 1985.
- [64] D. Eimerl, L. Davis et S. Velsko, “Optical, mechanical, and thermal properties of barium borate”, *J. Appl. Phys.*, vol. 65, no. 5, pp. 1968–1983, 1987.
- [65] Rysvan Maleck-Rassoul, *Génération de second harmonique d’impulsions femtosecondes intenses. Application au pompage d’un amplificateur paramétrique femtoseconde fonctionnant dans le domaine visible et injecté par un continuum de lumière blanche*, Thèse de doctorat, Université Bordeaux I, 1997.
- [66] Jennifer Mary Watson, *Amplification paramétrique en régime femtoseconde. Application au développement de sources femtosecondes accordables dans le visible et à l’imagerie en milieu diffusant*, Thèse de doctorat, Université Paris-Sud, Centre d’Orsay, 1994.
- [67] R. Danielius, A. Piskarskas, A. Stabinis, G.P. Banfi, P. Di Trapani et R. Righini, “Traveling-wave parametric generation of widely tunable, highly coherent femtosecond light pulses”, *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 10, no. 11, pp. 2222–2232, 1993.
- [68] M. M. Murnane et R. W. Falcone, “High-power femtosecond dye-laser system”, *J. Soc. Am. B*, vol. 5, no. 8, pp. 1573–1575, 1988.
- [69] C. V. Shank, “Physics of dye lasers”, *Reviews of Modern Physics*, vol. 47, no. 3, pp. 649–657, 1975.
- [70] M. K. Reed, M. K. Steiner-Shepard et D. K. Negus, “Widely tunable femtosecond optical parametric amplifier at 250kHz with a Ti:sapphire regenerative amplifier”, *Optics Letters*, vol. 19, no. 22, pp. 1855–1857, 1994.
- [71] F. Cerdeira, F. E. A. Melo et V. Lemos, “Raman study of anharmonic effects in $\alpha - LiIO_3$ ”, *Phys. Rev. B*, vol. 27, no. 12, pp. 7716–7729, 1983.
- [72] W. S. Otaguro, E. Wiener-Avnear et S. P. S. Porto, “Determination of the second-harmonic-generation and the linear electro-optic coefficient in $LiIO_3$ through oblique Raman phonon measurements”, *Appl. Phys. Lett.*, vol. 18, no. 11, pp. 499–501, 1971.
- [73] M. W. Wefers, H. Kawashima et K. A. Nelson, “Optical control over femtosecond polarization dynamics”, *J. Phys. Chem. Solids*, vol. 57, no. 10, pp. 1425–1432, 1996.

- [74] Y. Liu, A. Frenkel, G. A. Garrett, J. F. Whitaker, S. Fahy, C. Uher et R. Merlin, “Impulsive Light Scattering by coherent Phonons in LaAlO_3 : Disorder and boundary effects”, *Phys. Rev. Letters*, vol. 75, no. 2, pp. 334–337, 1995.
- [75] T. P. Dougherty, G. P. Wiederrecht et K. A. Nelson, “Impulsive stimulated Raman scattering experiments in the polariton regime”, *J. Opt. Am. B*, vol. 9, no. 12, pp. 2179–2189, 1992.
- [76] H. J. Bakker, S. Hunsche et H. Kurz, “Time-resolved study of phonon polaritons in LiTaO_3 ”, *Phys. Rev. B*, vol. 48, no. 18, pp. 13524–13537, 1993.
- [77] J. C. Louergue et J. Etchepare, “E-symmetry phonon in PbTiO_3 ”, *Phys. Rev. B*, vol. 52, no. 21, pp. 15160–15164, 1995.
- [78] O. Albert, C. A. Gautier, J.C. Louergue et J. Etchepare, “Wavevector sensitive phonon excitation by ultrashort light pulses”, *Solid State Communications*, may 1998, accepted.
- [79] O. Albert et J. Etchepare, “Femtosecond temporal behavior measurement of Kerr like cascaded second-order nonlinearities”, *Optics Communications*, april 1998, submitted.
- [80] M. A. Krumbügel, J. N. Sweetser, D. N. Fittinghoff, K. W. DeLong et R. Trebino, “Ultrafast optical switching by use of fully phase-matched second-order nonlinearities in a polarization-gate geometry”, *Optics Letters*, vol. 22, no. 4, pp. 245–247, 1997.
- [81] R. Desalvo, D. J. Hagan, M. Sheik-Bahae, G. Stegeman et E. W. Van Stryland, “Self-focusing and self-defocusing by cascaded second-order effects in KTP”, *Optics Letters*, vol. 17, no. 1, pp. 28–30, 1992.
- [82] P. C. M. Planken, H. J. Bakker, L. Kuipers et A. Lagendijk, “Frequency chirp in optical parametric amplification with large phase mismatch in noncentrosymmetric crystals”, *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 7, no. 11, pp. 2150–2154, 1990.
- [83] R. Danielius, P. Di Trapani, A. Dubietis, A. Piskarskas, D. Podenas et G. P. Banfi, “Self-diffraction through cascaded second-order frequency-mixing effects in β -barium borate”, *Optics Letters*, vol. 18, no. 8, pp. 574–476, 1993.
- [84] M. Zgonik et P. Günter, “Cascading nonlinearities in optical four-wave mixing”, *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 13, no. 3, pp. 570–576, 1996.
- [85] Ch. Bosshard, R. Spreiter, M. Zgonik et P. Günter, “Kerr nonlinearity via cascaded optical rectification and the linear electro-optic effect”, *Phys. Rev. Letters*, vol. 74, no. 14, pp. 2816–2819, 1995.

- [86] M. Bass, P. A. Franken, J. F. Ward et G. Weinreich, "Optical rectification", *Phys. Rev. Lett.*, vol. 9, no. 11, pp. 446–448, 1962.
- [87] Ch. Bosshard, R. Spreiter, M. Zgonik et P. Günter, "Cascaded nonlinearities of organic and inorganic single crystals", *Nonlinear Optics*, vol. 15, pp. 425–429, 1996.
- [88] Adeline Bonvalet, *Spectroscopie infrarouge femtoseconde : étude, développement et applications*, Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique, octobre 1997.
- [89] D.H. Auston, K.P. Cheung, J.A. Valdmanis et D.A. Kleinman, "Cherenkov radiation from femtosecond optical pulses in electro-optic media", *Phys. Rev. Lett.*, vol. 53, no. 16, pp. 1555–1558, 1984.
- [90] S. Saltiel, S. Tanev et A.D. Boardman, "High-order nonlinear phase shift caused by cascaded third-order processes", *Optics letters*, vol. 22, no. 3, pp. 1–3, 1997.
- [91] O. Gorbounova, Y. J. Ding, J. B. Khurgin, S. J. Lee et A. E. Craig, "Optical frequency shifters based on cascaded second-order nonlinear processes", *Optics Letters*, vol. 21, no. 8, pp. 558–560, 1996.
- [92] R. Danielius, A. Dubietis, A. Piskarskas, G. Valiulis et A. Varanavičius, "Generation of compressed 600-720-nm tunable femtosecond pulses by transient frequency mixing in a β -barium borate crystal", *Optics Letters*, vol. 21, no. 3, pp. 216–218, 1996.
- [93] A. Dubietis, G. Valiulis, R. Danielius et A. Piskarskas, "Fundamental-frequency pulse compression through cascaded second-order processes in a type II phase-matched second-harmonic generator", *Optics Letters*, vol. 21, no. 16, pp. 1262–1264, 1996.
- [94] R. Maleck Rassoul, A. Ivanov, E. Freysz, A. Ducasse et F. Hache, "Second-harmonic generation under phase-velocity and group-velocity mismatch : influence of cascading self-phase and cross-phase modulation", *Optics Letters*, vol. 22, no. 5, pp. 268–270, 1997.

Index

Symboles

$\chi^{(3)}$	37
$\chi^{(4)}$	117
$\chi^{(5)}$	117
ϕ	66
θ	66
β -BBO	
n_2	113
Accordabilité	64, 88
Expériences	107
Gain	70
Indices	60
Spectre	70
Symétrie	60
$\chi^{(2)}$	58
KNbO ₃	97, 114
LiIO ₃	100

A

Aberrations géométriques ...	22, 23
Accord de phase	
Amplification paramétrique .	62
Seconde harmonique	73
Vecteur d'onde	42
Airy	9
Amplificateur Paramétrique	61
Anisotropie	11
Approximation harmonique	34

B

Bessel	14
Born-Oppenheimer	33
Bragg	31, 104
Brillouin	34

C

Caméra vidéo	93
CARS	43
Cascade	107
Causalité <i>voir</i> Kramers-Krönig	
Chirp	79, 82, 111
Continuum	77
Corrélation croisée	84
Cross-correlation . <i>voir</i> Corrélation croisée	

D

Diffraction de Fraunhofer	13
Diffraction de Fresnel	13
Différences finies	53
Doublage ... <i>voir</i> Génération de 2 ^{de} harmonique	
Double réfraction	66
Dégénérescence	63, 72, 88

E

Echantillonneur-bloqueur	91
Enveloppe lentement variable	9

F

Faisceau gaussien	8
Filtrage spatial	14

G

GPIB	91
Green	37
Génération de 2 ^{de} harmonique ..	73

H

Hankel	14
Helmholtz	8
Homodyne	32
Huang	39

Hétérodyne 32

I

Idler 59, 88

K

Kramers-Krönig 37

L

Labview 93

Lentille de Kerr 10, 22

Ligne à retard 91

Limite de Fourier 70

Longueur quasistatique 67

Lyddane-Sachs-Teller 39

M

Masque de phase 9

Maxwell 41

N

Normalisation 95

O

Onde de polarisation 39

Oscillateur femtoseconde 75

P

Paraxial (approx.) 8

Phase 5, 10

Phonons

$\chi^{(3)}$ 37

Dispersion 34

Induction 36

Polaritons 39

Théorie 33

Vecteur d'onde 42

Photodiode 91

Pockels 115

Porte Kerr 31

R

Raman 42

Rayleigh 12

Rectification optique 115

Réseaux induits 31

S

Schrödinger 33

Sellmeier 60

SPM 108

Stokes 45

Système d'acquisition 90

T

Tenseur Raman 38

Top Hat 9

Transformée de Fourier 13

W

Walk off *voir* Double réfraction

X

XPM 54, 98, 110

Z

Z-scan 6

Zernike 25

Titre : Variations d'indice non linéaire en régime femtoseconde : effets directs et effets en cascade

Résumé : Cette thèse présente des applications de l'optique non linéaire à la génération de fréquence et à la caractérisation temporelle de phénomènes de phase non linéaire. Elle comporte :

- la réalisation d'un amplificateur paramétrique optique femtoseconde permettant de disposer de longueurs d'onde dans l'infrarouge proche.
- un système expérimental de mesure de phase permettant de mesurer l'évolution temporelle de phases non linéaires.
- des mesures de fréquences de phonons optique dans des cristaux pérovskites. La détermination théorique et expérimentale du vecteur d'onde associé au phonon a permis de séparer deux processus expérimentaux différents.
- la mesure de la dynamique temporelle du déphasage induit par une cascade de non linéarités du second ordre lors de la génération de fréquence somme. Les résultats ont montré que le déphasage n'est pas assimilable à un phénomène instantané et que le décalage temporel de fréquence associé est non linéaire.

Title : Femtosecond nonlinear index variations : direct and cascaded effects

Abstract : This manuscript presents nonlinear optic applications to frequency generation and temporal measurement of nonlinear phase processes. It deals with:

- a femtosecond parametric amplification setup that enable to extend experimental wavelength to the near infrared.
- a linear phase shift measurement system for time resolved pump-probe experiments.
- optical phonon frequency measurement in perovskites crystals, including theoretical and experimental determination of the associated wave vector.
- temporal measurement of the phase shift induced by cascaded second order nonlinearities. We show that it behaves like a non instantaneous process for second harmonic or sum frequency generations. The associated chirp is therefore nonlinear.

Discipline : Optique et Photonique

Mots clés : optique non linéaire, amplification paramétrique optique, lentille de Kerr, spectroscopie impulsionnelle, phonon, polariton, vecteur d'onde, non linéarités en cascade

Laboratoire : Laboratoire d'Optique Appliquée, CNRS : UMR 7639, Ecole Nationale Supérieure de Techniques Avancées, Ecole Polytechnique, centre de l'Yvette 91761 Palaiseau CEDEX